

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
〔PCT18条、PCT規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 G924-PCT	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。		
国際出願番号 PCT/JP99/06057	国際出願日 (日.月.年) 29.10.99	優先日 (日.月.年) 30.10.98	
出願人(氏名又は名称) 帝人株式会社			

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 14 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335, C08J5/18

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335, C08J5/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-1999年  
 日本国登録実用新案公報 1994-1999年  
 日本国実用新案登録公報 1996-1999年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 8-57950, A (東洋紡績株式会社) 5. 3月. 1996 (05. 03. 96) 第5頁右下欄第10行~第33行 (ファミリーなし)	1-3, 5, 10, 11-24, 25, 26
X	JP, 6-82624, A (出光興産株式会社) 25. 3月. 1994 (25. 03. 94) 請求項1、第3頁右欄第40行~第4頁左欄第19行、第4頁右欄 第38行~第6右欄第24行 (ファミリーなし)	1-9, 11-24, 25, 26

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07. 01. 00

国際調査報告の発送日

18.01.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山村 浩

2V

9219

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

THIS PAGE BLANK (USPTO)



THIS PAGE BLANK (USPTO)



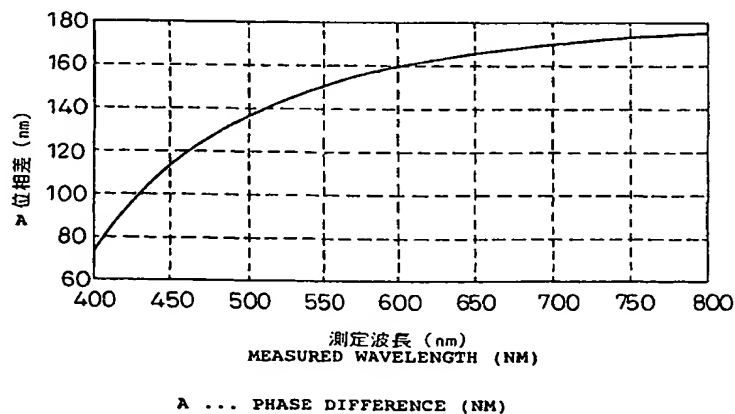
PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類 <b>G02B 5/30, G02F 1/1335, C08J 5/18</b>		A1	(11) 国際公開番号 <b>WO00/26705</b>
			(43) 国際公開日 2000年5月11日(11.05.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/06057		(81) 指定国 CA, CN, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)	
(22) 国際出願日 1999年10月29日(29.10.99)		添付公開書類 国際調査報告書	
(30) 優先権データ 特願平10/310371 1998年10月30日(30.10.98) JP 特願平10/314761 1998年11月5日(05.11.98) JP 特願平11/94846 1999年4月1日(01.04.99) JP			
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 帝人株式会社(TEIJIN LIMITED)[JP/JP] 〒541-0054 大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号 Osaka, (JP)			
(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 内山昭彦(UCHIYAMA, Akihiko)[JP/JP] 串田 尚(KUSHIDA, Takashi)[JP/JP] 〒191-0065 東京都日野市旭が丘4丁目3番2号 帝人株式会社 東京研究センター内 Tokyo, (JP)			
(74) 代理人 石田 敬, 外(ISHIDA, Takashi et al.) 〒105-8423 東京都港区虎ノ門三丁目5番1号 虎ノ門37森ビル 青和特許法律事務所 Tokyo, (JP)			

(54)Title: PHASE DIFFERENCE FILM AND OPTICAL DEVICE USING IT

(54)発明の名称 位相差フィルム及びそれを用いた光学装置



(57) Abstract

Phase difference film consisting of one sheet of polymer oriented film, characterized in that phase differences at wavelengths of 450 nm and 550 nm satisfy the following formulae (1) and/or (2) and an absorptance is up to 1 wt. %:  $R(450)/R(550) < 1$  (1),  $K(450)/K(550) < 1$  (2), Wherein  $R(450)$  and  $R(550)$  in the formula are respectively in-plane phase differences at wavelengths of 450 nm and 550 nm, and  $K(450)$  and  $K(550)$  are values calculated by the equation  $K = [n_x - (n_y + n_z)/2] \times d$  of polymer oriented film at respective wavelengths of 450 nm and 550 nm ( $n_x$ ,  $n_y$ ,  $n_z$  form a three-dimensional refractive index of polymer oriented film and are respectively x-axis, y-axis, z-axis direction refractive indexes, and  $d$  is a film thickness). Laminated phase difference film and a liquid crystal device using the phase difference film.

(57)要約

1 枚の高分子配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式 (1) 及び / 又は (2) を満たし、かつ吸水率が 1 重量 % 以下であることを特徴とする位相差フィルム。

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

$$K(450) / K(550) < 1 \quad (2)$$

[式中、 $R(450)$  及び  $R(550)$  はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差であり、 $K(450)$  及び  $K(550)$  はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの  $K = [n_z - (n_x + n_y) / 2] \times d$  (式中、 $n_x$ ,  $n_y$ ,  $n_z$  は高分子配向フィルムの三次元屈折率でそれぞれ  $x$  軸、 $y$  軸、 $z$  軸方向の屈折率であり、 $d$  はフィルムの厚さである。) で計算される値である。]

この位相差フィルムを用いた積層位相差フィルム、液晶表示装置も提供される。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	DM ドミニカ	KZ カザフスタン	RU ロシア
AL アルバニア	EE エストニア	LC セントルシア	SD スーダン
AM アルメニア	ES スペイン	LI リヒテンシュタイン	SE スウェーデン
AT オーストリア	FI フィンランド	LK スリ・ランカ	SG シンガポール
AU オーストラリア	FR フランス	LR リベリア	SI スロヴェニア
AZ アゼルバイジャン	GA ガボン	LS レント	SK スロヴァキア
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB 英国	LT リトアニア	SL シエラ・レオネ
BB バルバドス	GDE グレナダ	LU ルクセンブルグ	SN セネガル
BE ベルギー	GE グルジア	LV ラトヴィア	SZ スワジランド
BF ブルキナ・ファソ	GH ガーナ	MA モロッコ	TD チャド
BG ブルガリア	GM ガンビア	MC モナコ	TG トーゴ
BJ ベナン	GN キニア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BR ブラジル	GW キニア・ビサオ	MG マダガスカル	TZ タンザニア
BY ベラルーシ	GR キリシヤ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM トルクメニスタン
CA カナダ	HR クロアチア		TR トルコ
CF 中央アフリカ	HU ハンガリー	ML マリ	TT トリニダード・トバゴ
CG コンゴ	ID インドネシア	MN モンゴル	UA ウクライナ
CH スイス	IE アイルランド	MR モーリタニア	UG ウガンダ
CI コートジボアール	IL イスラエル	MW マラウイ	US 米国
CM カメルーン	IN インド	MX メキシコ	UZ ウズベキスタン
CN 中国	IS アイスランド	NE ニジェール	VN ヴイエトナム
CR コスタ・リカ	IT イタリア	NL オランダ	YU ユーゴスラビア
CU キューバ	JP 日本	NO ノールウェー	ZA 南アフリカ共和国
CY キプロス	KE ケニア	NZ ニュー・ジーランド	ZW ジンバブエ
CZ チェッコ	KG キルギスタン		
DE ドイツ	KP 北朝鮮	PL ポーランド	
DK デンマーク	KR 韓国	PT ポルトガル	
		RO ルーマニア	



## 明 細 書

## 位相差フィルム及びそれを用いた光学装置

## 発明の技術分野

本発明は液晶表示装置、防眩フィルム、光記録装置等の光学素子において用いられる、位相差値が測定波長 400～700 nmにおいて、短波長ほど小さい位相差フィルム、及びそれを用いた円偏光板、楕円偏光板、液晶表示装置その他の光学装置に関する。

## 背景技術

位相差フィルムは液晶表示装置のSTN(スーパーツイステッドネマチック)方式等に用いられ、色補償、視野角拡大等の問題を解決するために用いられている。一般に、色補償用の位相差フィルムの材料としてはポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、アモルファスポリオレフィン等が用いられ、視野角拡大用の位相差フィルム材料としては前記した材料に加えて高分子液晶、ディスプレイ液晶等が用いられている。

位相差フィルム的一种である四分の一波長板は、円偏光を直線偏光に、直線偏光を円偏光に変換することが出来る。これは、液晶表示装置特に観測者側から見て裏面側の電極を反射電極とした偏光板一枚板の反射型液晶表示装置や、偏光板と四分の一波長板とを組み合わせることからなる反射防止フィルム、また、コレステリック液晶等からなる右または左回りのどちらか一方の円偏光のみを反射する反射型偏光板等と組み合わせられて用いられるようになっている。

上記した偏光板一枚型の反射型液晶表示装置や反射型偏光板において用いられる位相差フィルムは、可視光領域である測定波長 400

～700 nm好ましくは 400～780 nmにおいて直線偏光を円偏光に、円偏光を直線偏光に変換する作用を有する必要がある。これを位相差フィルム一枚で実現しようとする、測定波長 $\lambda = 400 \sim 700$  nm好ましくは 400～780 nmにおいて位相差が $\lambda / 4$  (nm) となることがその位相差フィルムの理想である。

一般に四分の一波長板としては、上記した色補償用の位相差フィルム材料等が用いられるが、これらの材料は複屈折に波長分散を持っている。一般に高分子フィルムの複屈折は測定波長が短波長ほど大きく、長波長ほど小さくなる。それゆえ、高分子フィルム1枚だけで測定波長 $\lambda = 400 \sim 700$  nmにおいて、前記した理想的な四分の一波長板のように測定波長が短いほど複屈折が小さくなるものを得ることは困難であった。

理想的な四分の一波長板のように測定波長が短いほど複屈折が小さくなるフィルムを得るために、特開平10-68816号公報には四分の一波長板と二分の一波長板を適当な角度で貼り合わせて用いるといった技術、また、特開平2-285304号公報にはアッベ数の異なる二枚の位相差フィルムを積層するといった技術等が開示されている。

前記した理想的な四分の一波長板のように測定波長が短いほど位相差が小さくなるフィルムを得るためには、現状技術ではフィルムを二枚使わなくてはならず、フィルム貼り合わせ工程の増加やコスト増、光学設計上の負荷増大等の問題がある。また、特開平3-29921号公報には、少なくとも二種類の有機高分子の混合体あるいは共重合体フィルムを一軸延伸してなる位相差フィルムであって、前記二種類の有機高分子のうち第一の有機高分子は正の光弾性係数を有し、第二の有機高分子は負の光弾性係数を有することにより、測定波長が短いほど複屈折が大きくなる位相差フィルムが開示されて

いるが、測定波長が短いほど複屈折を小さくする方法については何ら言及していない。本発明はこのような課題を解決し、フィルム一枚で測定波長が短いほど位相差が小さくなる位相差フィルムを実現出来るようにするものである。

#### 発明の概要

本発明者は、上記課題を解決するために位相差フィルム用の高分子材料を鋭意検討し、1枚の高分子配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式（1）及び／又は（2）

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

$$K(450) / K(550) < 1 \quad (2)$$

〔式中、 $R(450)$  及び  $R(550)$  はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差であり、 $K(450)$  及び  $K(550)$  はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの  $K = [n_z - (n_x + n_y) / 2] \times d$ （式中、 $n_x$ 、 $n_y$ 、 $n_z$  は高分子配向フィルムの三次元屈折率でそれぞれ x 軸、y 軸、z 軸方向の屈折率であり、 $d$  はフィルムの厚さである。）で計算される値である。〕

を満たし、かつ吸水率が 1 重量％以下であることを特徴とする位相差フィルムを提供することに成功したものである。

〔1〕 1枚の高分子配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式（1）及び／又は（2）を満たし、かつ吸水率が 1 重量％以下であることを特徴とする位相差フィルム。

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

$$K(450) / K(550) < 1 \quad (2)$$

〔式中、 $R(450)$  及び  $R(550)$  はそれぞれ波長 450nm 及び 550nm における高分子配向フィルムの面内位相差であり、 $K(450)$  及び  $K(550)$  はそれぞれ波長 450nm 及び 550nm における高分子配向フィルムの  $K = [n_z - (n_x + n_y) / 2] \times d$  (式中、 $n_x$ ,  $n_y$ ,  $n_z$  は高分子配向フィルムの三次元屈折率でそれぞれ  $x$  軸、 $y$  軸、 $z$  軸方向の屈折率であり、 $d$  はフィルムの厚さである。) で計算される値である。〕

〔2〕波長 450nm、550nm 及び 650nm における位相差が下記式 (3) 及び (4) :

$$0.6 < R(450) / R(550) < 0.97 \quad (3)$$

$$1.01 < R(650) / R(550) < 1.4 \quad (4)$$

〔式中、 $R(650)$  は波長 650nm における高分子配向フィルムの面内位相差である。〕

を満たす〔1〕の位相差フィルム。

〔3〕波長 400~700 nm において位相差が短波長ほど小さい〔1〕又は〔2〕の位相差フィルム。

〔4〕(1) 正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位 (以下、第 1 のモノマー単位という。) と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位 (以下、第 2 のモノマー単位という。) とを含む高分子から構成されるフィルムであって、

(2) 該第 1 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  は、該第 2 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも小さく、かつ

(3) 正の屈折率異方性を有する、  
高分子配向フィルムからなる〔1〕~〔3〕の位相差フィルム。

〔5〕(1) 正の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位 (以下、第 1 のモノマー単位という。) と負の屈折率異方性

を有する高分子を形成するモノマー単位（以下、第 2 のモノマー単位という。）とを含む高分子から構成されるフィルムであって、

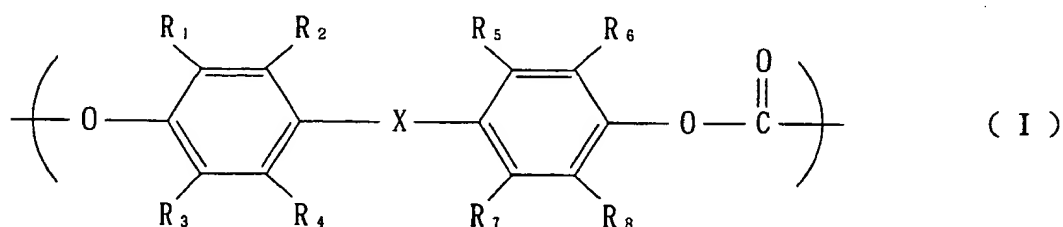
（2）該第 1 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  は、該第 2 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも大きく、かつ

（3）負の屈折率異方性を有する、  
高分子配向フィルムからなる〔1〕～〔3〕の位相差フィルム。

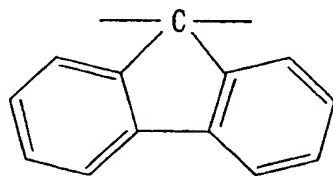
〔6〕前記高分子配向フィルムがガラス転移点温度が  $120^{\circ}\text{C}$  以上である熱可塑性樹脂である〔1〕～〔5〕の位相差フィルム。

〔7〕前記高分子配向フィルムがフルオレン骨格を有するポリカーボネートを含む〔1〕～〔6〕の位相差フィルム。

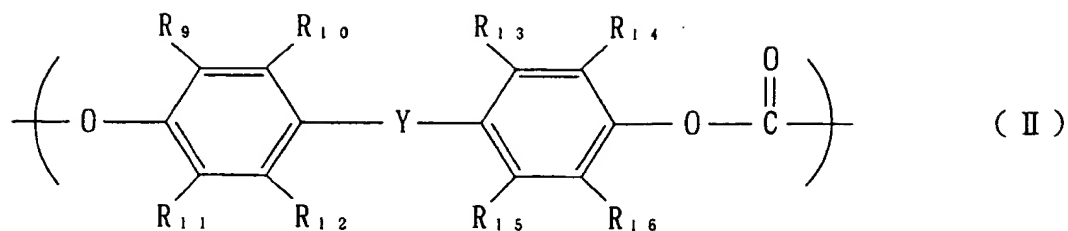
〔8〕下記一般式（I）



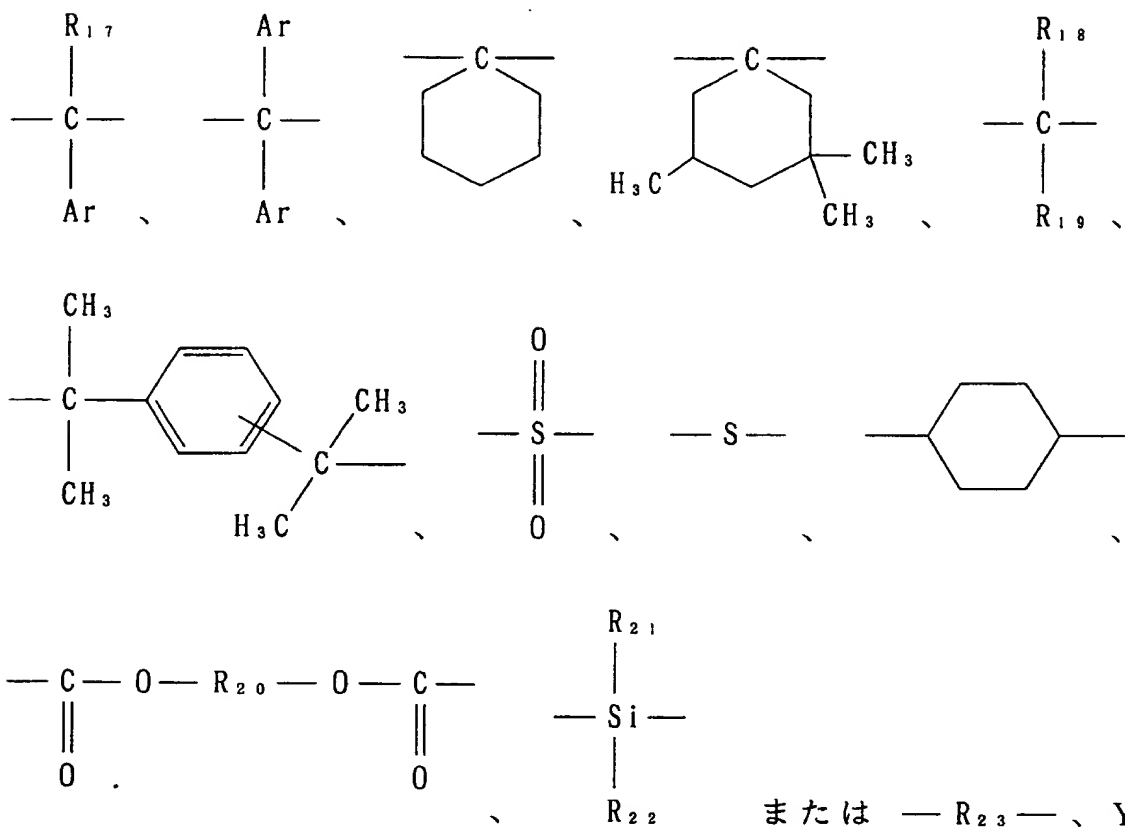
（上記式（I）において、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_8$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1 ～ 6 の炭化水素基から選ばれ、 $\text{X}$  は



である。）で示される繰り返し単位が全体の 30 ～ 90 モル％、下記式（II）

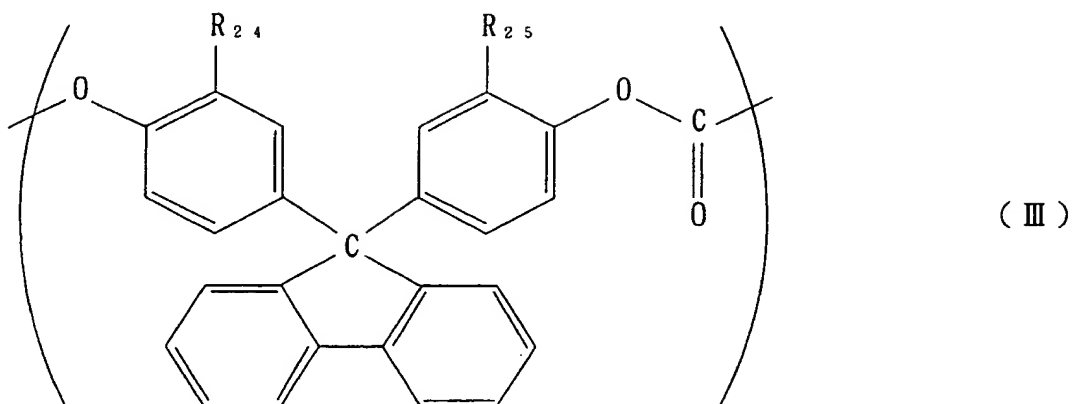


(上記式 (II) において、 $\text{R}_9 \sim \text{R}_{16}$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1 ～ 22 の炭化水素基から選ばれ、 $\text{Y}$  は

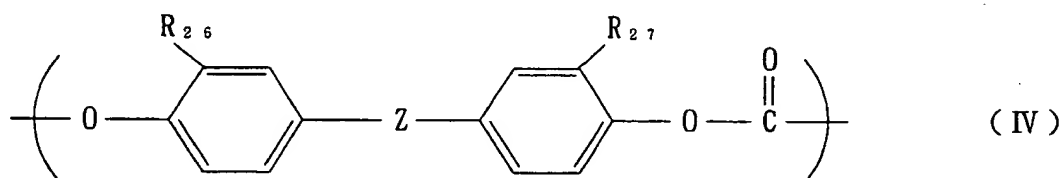


中の  $\text{R}_{17} \sim \text{R}_{19}$ ,  $\text{R}_{21}$ ,  $\text{R}_{22}$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1 ～ 22 の炭化水素基から、 $\text{R}_{20}$ ,  $\text{R}_{23}$  は炭素数 1 ～ 20 の炭化水素基から、また、 $\text{Ar}$  は炭素数 6 ～ 10 のアリール基から選ばれる。) で示される繰り返し単位が全体の 70 ～ 10 モル % を占めるポリカーボネート共重合体及び／またはブレンド体からなる高分子配向フィルムである〔1〕～〔7〕の位相差フィルム。

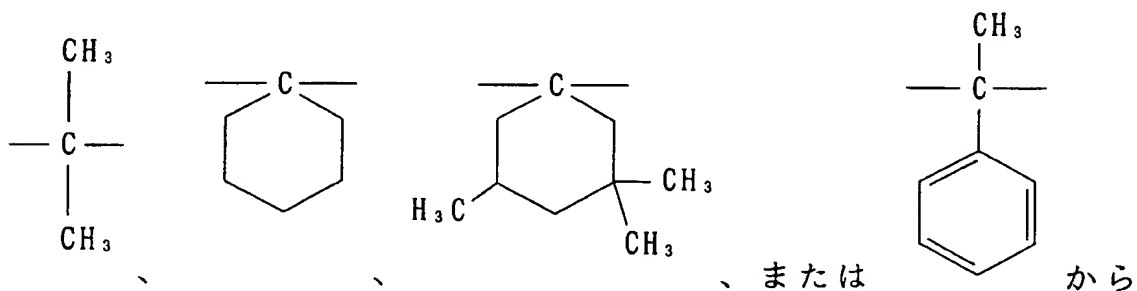
〔 9 〕 下記一般式 (Ⅲ)



(上記式 (Ⅲ) において、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$  はそれぞれ独立に水素原子またはメチル基から選ばれる。) で示される繰り返し単位が全体の 35～85 モル%、下記式 (Ⅳ) で示される繰り返し単位



(上記式 (Ⅳ) において  $R_{26}$ 、 $R_{27}$  はそれぞれ独立に水素原子、メチル基から選ばれ、 $Z$  は



選ばれる。) が全体の 65～15 モル% を占めるポリカーボネート共重合体及び／またはブレンド体からなる高分子配向フィルムである〔 8 〕の位相差フィルム。

〔10〕 前記正の屈折率異方性を有する高分子がポリ ( 2 , 6 - ジ

メチルー 1, 4-フェニレンオキサイド) であり、前記負の屈折率異方性を有する高分子がポリスチレンであるブレンド高分子配向フィルムであって、ポリスチレン含有割合が67重量%~75重量%である〔5〕の位相差フィルム。

〔11〕 物体色を表す  $b^*$  値が 1.3以下である〔1〕~〔10〕の位相差フィルム。

〔12〕  $\lambda/4$  板である〔1〕~〔11〕の位相差フィルム。

〔13〕  $\lambda/2$  板である〔1〕~〔11〕の位相差フィルム。

〔14〕  $R(550) \geq 90\text{nm}$ である〔12〕又は〔13〕の位相差フィルム。

〔15〕  $\lambda/4$  板と  $\lambda/2$  板を積層して成り、 $\lambda/4$  板と  $\lambda/2$  板の両方が〔1〕~〔14〕の積層位相差フィルム。

〔16〕  $\lambda/4$  板と  $\lambda/2$  板との光軸のなす角度が50度~70度の範囲内である〔15〕の積層位相差フィルム。

〔17〕〔1〕~〔16〕の位相差フィルムと偏光板を積層して成る円偏光板又は楕円偏光板。

〔18〕〔1〕~〔16〕の位相差フィルムと反射型偏光板を積層して成る円偏光板又は楕円偏光板。

〔19〕〔1〕~〔16〕の位相差フィルムと反射型偏光板と偏光板を積層して成る円偏光板又は楕円偏光板。

〔20〕前記反射型偏光板がどちらか一方に回転している円偏光のみを反射する機能を有する〔18〕又は〔19〕の円偏光板又は楕円偏光板。

〔21〕前記反射型偏光板がコレステリック液晶高分子からなる〔20〕の円偏光板又は楕円偏光板。

〔22〕〔1〕~〔21〕の位相差フィルムを設置した液晶表示装置。



〔23〕 反射型液晶表示装置である〔22〕の液晶表示装置。

〔24〕 前記位相差フィルムが視野角補償板である〔22〕又は〔23〕の液晶表示装置。

〔25〕 1枚のポリカーボネート配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が、下記式（1）

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

〔式中、 $R(450)$  及び  $R(550)$  はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差である。〕

を満たし、かつ  $R(550)$  が 50nm以上である位相差フィルム。

〔26〕 偏光板、 $\lambda/4$ 板、及び透明電極を有する2枚の基板間に液晶層を含む液晶セルをこの順で具備する反射型液晶表示装置であって、かかる  $\lambda/4$ 板として、1枚のポリカーボネート配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式（1）

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

〔式中、 $R(450)$  及び  $R(550)$  はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差である。〕

を満たし、かつ  $R(550)$  が 100～180 nmである位相差フィルムを用いた反射型液晶表示装置。

#### 図面の簡単な説明

図1～4は二成分ブレンド高分子の複屈折の波長分散と高分子の種類及びブレンド比との関係を示すグラフである。

図5は本発明の条件を満たさない積層位相差フィルムの着色具合を示すシミュレーション結果を示すグラフである。

図6は実施例16, 17および比較例16, 17の積層位相差フィルムの

着色の具合を示すグラフである。

図7～図10は積層位相差フィルムの例を示し、図7は $\lambda/4$ 板3と $\lambda/2$ 板1の貼り合せ、図8は $\lambda/4$ 板と $\lambda/2$ 板と偏光板4の貼り合せ、図9は $\lambda/4$ 板と偏光板の貼り合せ、図10は偏光板4と $\lambda/4$ 板3とコレステリック液晶層5の貼り合せである。図10は実施例17である。

図11～図13は液晶表示装置の例を示し、図11は偏光板4// $\lambda/4$ 板3//ガラス基板6//液晶層8//ガラス基板6// $\lambda/4$ 板3//偏光板4//バックライトシステム10の構成、図12は偏光板4// $\lambda/4$ 板3//ガラス基板6//透明電極7//液晶層8//凹凸反射電極9//ガラス基板6の構成、図13は偏光板4// $\lambda/4$ 板3//光拡散板11//ガラス基板6//透明電極7//液晶層8//鏡面反射電極12//ガラス電極6の構成である。図12は実施例13である。

図14は、実施例1の位相差フィルムの位相差と波長との関係を示すグラフである。

図15～16は実施例12の位相差フィルムの複屈折波長分散係数のポリマーの成分の体積分率との関係を示すグラフである。

#### 発明の詳細な説明

本発明は、1枚の高分子配向フィルムにおいて可視光波長域において波長に依存しない理想的な $\lambda/4$ 板および $\lambda/2$ 板を得ることを探求する過程で、位相差が短波長ほど小さい1枚の高分子配向フィルムを提供することに成功し、上記目的を達成するとともに、従来にはない特性を持つ位相差フィルムを提供するに至ったものである。

位相差が短波長ほど小さいことは、実用的な観点から、R(450)

／ $R(550) < 1$  または  $K(450) / K(550) < 1$  で表わすことができる。波長域を広げるならば、さらに  $R(650) / R(550) > 1$  または  $K(650) / K(550) > 1$  であることが望ましい。これらの位相差分散またはK値分散のより好ましい範囲については後記する。

ここで、本発明においては、波長 450, 550, 650nmにおける高分子配向フィルムの位相差およびK値をそれぞれ  $R(450)$ ,  $R(550)$ ,  $R(650)$ 、及び  $K(450)$ ,  $K(550)$ ,  $K(650)$  と表記する。

高分子配向フィルムの位相差（レターデーション）は、光が厚さ  $d$  のフィルムを透過したときにフィルムの配向方向とそれに垂直な方向の光の進行速度（屈折率）の差にもとづく位相の差をいい、配向方向とそれに垂直な方向の屈折率の差  $\Delta n$  とフィルムの厚さ  $d$  との積  $\Delta n \cdot d$  で表わされることは知られている。

本発明における高分子配向フィルムの配向とは、高分子分子鎖が主として特定の方向に並んだ状態を指しており、この状態はフィルムの位相差（ $\Delta n \cdot d$ ）測定により測定し得るが、ここでいう配向とは測定波長 550nmで位相差  $R(550)$  が20nm以上及び／又は  $K(550)$  が20nm以上を指す。配向は、通常フィルムの延伸によって生ずる。

位相差  $\Delta n \cdot d$  は高分子配向フィルムが同一であれば複屈折  $\Delta n$  に比例するので、位相差の波長分散（波長依存性）は複屈折  $\Delta n$  の波長分散（波長依存性）で表わすことができる。

高分子配向フィルムの面内における配向方向の屈折率がそれと垂直な方向の屈折率より大きい場合を、光学的異方性が正といい、逆の場合を光学的異方性が負という。ここで高分子配向フィルムの配向方向は、例えば、フィルムを公知の位相差フィルム製造条件であるガラス転移点温度  $T_g$  近傍（ $T_g \pm 20^\circ\text{C}$ ）の条件で一軸延伸した場合には、その延伸方向になる。二軸延伸の場合には配向が高くなるよ

うに延伸した方向をいう。

なお、本発明において、位相差というときは位相差の絶対値をいう。光学異方性が負の場合には位相差は負であるが、本発明では特にことわらない限り正負の符号は無視する。

また、光学異方性の正負を判断するのに用いる測定光学波長は 550nmとする。

本発明によれば、位相差が短波長ほど小さい 1 枚の高分子配向フィルムからなる位相差フィルムは、下記 (A) または (B) の条件を満たす高分子配向フィルムによって得ることができることが見いだされた。

(A) (1) 正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位（以下、第 1 のモノマー単位という。）と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位（以下、第 2 のモノマー単位という。）とを含む高分子から構成されるフィルムであって、

(2) 該第 1 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  は、該第 2 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも小さく、かつ

(3) 正の屈折率異方性を有する、  
高分子配向フィルム。

(B) (1) 正の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位（以下、第 1 のモノマー単位という。）と負の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位（以下、第 2 のモノマー単位という。）とを含む高分子から構成されるフィルムであって、

(2) 該第 1 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  は、該第 2 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも大きく、かつ

(3) 負の屈折率異方性を有する、

高分子配向フィルム。

上記（Ａ）（Ｂ）の条件を満たす態様の例として、下記条件（Ｃ）（Ｄ）を満たすものがある。

（Ｃ）（１）正の屈折率異方性を有する高分子と負の屈折率異方性を有する高分子とからなるブレンド高分子及び／又は正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位とからなる共重合体から構成されるフィルムであって、

（２）該正の屈折率異方性を有する高分子の  $R(450) / R(550)$  は該負の屈折率異方性を有する高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも小さく、かつ

（３）正の屈折率異方性を有する、  
高分子配向フィルム。

（Ｄ）（１）正の屈折率異方性を有する高分子と負の屈折率異方性を有する高分子とからなるブレンド高分子及び／又は正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位とからなる共重合体から構成されるフィルムであって、

（２）該正の屈折率異方性を有する高分子の  $R(450) / R(550)$  は該負の屈折率異方性を有する高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも大きく、かつ

（３）負の屈折率異方性を有する、  
高分子配向フィルム。

ここで、正又は負の屈折率異方性を有する高分子とは、正又は負の屈折率異方性を有する高分子配向フィルムを与える高分子をいう。

この位相差フィルムが、測定波長が短いほど位相差が小さくなる

必要条件である理由を以下に記す。

一般に、高分子 A と高分子 B の二成分からなる高分子ブレンドの複屈折  $\Delta n$  は、以下のように表されることが知られている。(H. Saito and T. Inoue, J. Pol. Sci. Part B, 25, 1629 (1987))

$$\Delta n = \Delta n^0_A f_A \phi_A + \Delta n^0_B f_B \phi_B + \Delta n_F \quad (a)$$

ここで、 $\Delta n^0_A$  : 高分子 A の固有複屈折、 $\Delta n^0_B$  : 高分子 B の固有複屈折、 $f_A$  : 高分子 A の配向関数、 $f_B$  : 高分子 B の配向関数、 $\phi_A$  : 高分子 A の体積分率、 $\phi_B$  : 高分子 B の体積分率 ( $= 1 - \phi_A$ )、 $\Delta n_F$  : 構造的複屈折である。一般に複屈折  $\Delta n$  は  $\Delta n = f \Delta n^0$  で表される。また、 $\Delta n^0$  は二色性赤外分光法と位相差測定等を組み合わせて求めることが出来る。

(a) 式はポリマー A, B 間の電子的な相互作用による分極率の変化は完全に無視しているが、以下でもこの仮定を採用する。また、本発明のような位相差フィルム用途では、光学的に透明であることが要求されることから、ブレンドは相溶ブレンドであることが好ましく、この場合には、 $\Delta n_F$  は非常に小さく無視することが出来る。

次に測定波長が短いほど複屈折が小さくなる位相差フィルムについてであるが、この測定波長として、ここでは 450, 550nm のみ考えることとする。この位相差フィルムのこれらの波長における複屈折をそれぞれ、 $\Delta n(450)$ 、 $\Delta n(550)$  とすると、 $\Delta n(450) / \Delta n(550) < 1$  と表せる。通常の高分子フィルムからなる位相差フィルムは  $\Delta n(450) / \Delta n(550) > 1$  であることは言うまでもなく、例えばビスフェノール A とホスゲンの重合から得られるポリカーボネートの  $\Delta n(450) / \Delta n(550)$  は 1.08 程度であり、複屈折の波長分散が小さいといわれるポリビニールアルコールでも 1.01 程度である。

この  $\Delta n(450) / \Delta n(550)$  を複屈折波長分散係数とすると、(a) 式を用いて次の様に表される。

$$\begin{aligned} & \Delta n(450) / \Delta n(550) \\ &= (\Delta n^0_A(450) f_A \phi_A + \Delta n^0_B(450) f_B \phi_B) / \\ & \quad (\Delta n^0_A(550) f_A \phi_A + \Delta n^0_B(550) f_B \phi_B) \quad (b) \end{aligned}$$

ここで、相溶ブレンドであるので  $f_A = f_B$  と仮定すると、(b) 式は以下のように書き表せる。

$$\begin{aligned} & \Delta n(450) / \Delta n(550) \\ &= (\Delta n^0_A(450) \phi_A + \Delta n^0_B(450) \phi_B) / \\ & \quad (\Delta n^0_A(550) \phi_A + \Delta n^0_B(550) \phi_B) \quad (c) \end{aligned}$$

次に表 1 に記すような仮想的な値を (c) 式に用いて、複屈折波長分散値について検討した。なお、表 1 では  $\Delta n^0_A(450)$ 、 $\Delta n^0_B(450)$  の代わりに、高分子 A, B 単独の複屈折分散値を記した。

表 1

ケース	$\Delta n^0_A(550)$	$\Delta n^0_B(550)$	$\Delta n^0_A(450) / \Delta n^0_A(550)$	$\Delta n^0_B(450) / \Delta n^0_B(550)$
1	0.2	-0.1	1.01	1.15
2	0.2	-0.1	1.15	1.01
3	0.1	-0.2	1.01	1.15
4	0.1	-0.2	1.15	1.01

式 (c) は表 1 の値が与えられると  $\phi_A$  の関数としてそれぞれ図 1 ~ 4 のように表される。表 1 では正の屈折率異方性を有する高分子を高分子 A、負のそれを高分子 B としているので、図 1 ~ 4 に記した漸近線よりも  $\phi_A$  の少ない領域では、ブレンド高分子の光学異方性は負であり、一方、漸近線よりも  $\phi_B$  の多い領域は異方性は正

である。

図 1 ～ 4 より明らかなように、 $\Delta n(450) / \Delta n(550) < 1$  となるためには、表 1 のケース 1, 3 のように、正の高分子の複屈折波長分散係数が負のそれよりも小さくかつ該高分子配向フィルムの光学異方性が正であるか、または、ケース 2, 4 のように高分子単独の複屈折波長分散係数が負のそれよりも大きくかつ該高分子配向フィルムの光学異方性が負である必要がある。ここでは、代表的な波長として 450, 550nm を用いたが、他の波長を用いても同様に成立する。

なお、(c) 式より考察すると、正と負の高分子の複屈折波長分散係数が完全に等しい場合には、本発明の位相差フィルムは得られない。

上記考察は、上記式 (a) を基にした考察であるが、後述する実施例のように実際の系でもこの考え方は非常によく成り立つので、この考え方が正しいことは実施例でも証明される。

上記の考察は 2 成分について述べたが、3 成分以上でも上記の考え方は成立する。例えば、正の光学異方性を有する成分が 2 成分と負の異方性を有する成分が 1 成分である系では、正の光学異方性を有する成分の複屈折率値及び複屈折分散値等を正の異方性の 2 成分間の体積分率等で補正し、この 2 成分を 1 成分と見なして上記式 (a) 以下の考察の考え方を適用することが可能である。

また、上記式 (a) に基づく説明は高分子 A, B のブレンドとして説明したが、高分子が異なるモノマー単位を含む共重合体の場合にも上述した考察の考え方は同様に成立し、第 1 のモノマー単位に基づく単独重合体 (高分子 A) と第 1 のモノマー単位と異なる第 2 のモノマー単位に基づく単独重合体 (高分子 B) とから成ると見なして上記の考え方を適用すればよい。



さらに、単独重合体と共重合体との高分子ブレンドあるいは共重合体どうしの高分子ブレンドでも、上述した考察の考え方を同様に適用することができる。即ち、この場合には、高分子ブレンドの成分高分子を構成するモノマー単位に分けて、その高分子ブレンドをそれぞれのモノマー単位からなる単独重合体の集合体と見なし、この集合体を正の光学異方性を有する単独重合体の群からなる成分 A と負の異方性を有する単独重合体の群からなる成分 B との組合せと見なして、上記の考察を適用すればよい。

例えば、正の光学異方性を有する高分子 X, Y と、負の光学異方性を有するモノマー単位 x, z の共重合体において、x が正の光学異方性を有し、z が負の光学異方性を有する場合には、正の光学異方性を有する成分は、X, Y 及び x からなると考えて、これらの複屈折率値及び複屈折分散値等を正の異方性の 3 成分間の体積分率等で補正して、これらの 3 成分を 1 成分 A とみなし、負の異方性を有する成分はモノマー単位 z からなる重合体 B と見なして、成分 A 及び成分 B について、上記 (a) 以下の考察の考え方を適用すればよい。

なお、第 1 又は第 2 のモノマー単位に基づく単独高分子において、単独高分子がポリカーボネートの場合、ポリカーボネートは一般にジヒドロキシ化合物とホスゲンとの重縮合により得られるので、重合の観点からは、ビスフェノールからなるジヒドロキシ化合物とホスゲンがモノマーになる。このようにポリカーボネートの場合は、モノマー単位はビスフェノールに由来する部分をいい、ホスゲンに由来する部分は含まない。

複屈折  $\Delta n$  は測定波長領域において長波長ほど大きいことが好ましいが、より具体的には下記式 (d), (e)

$$0.60 < R(450) / R(550) < 0.97 \quad (d)$$

かつ

$$1.01 < R(650) / R(550) < 1.35 \quad (e)$$

を満足することが好ましい。これらの値から外れた場合は、例えば、 $\lambda/4$ 板として使用する場合において、400～700 nmの直線偏光をこのフィルムに入射した際、得られる偏光状態はある特定の波長では完全な円偏光が得られるものの、それ以外の波長では大きく円偏光からずれてしまうといった問題が生じる。より好ましくは

$$0.60 < R(450) / R(550) < 0.95 \quad (d')$$

かつ

$$1.05 < R(650) / R(550) < 1.35 \quad (e')$$

である。

以上は位相差  $\Delta n d$  あるいは複屈折  $\Delta n$  にもとづいて理論を展開したが、三次元屈折率のK値 ( $K = [n_z - (n_x + n_y) / 2] \times d$ ) にもとづいても同様の理論展開がされる。このK値が  $K(450) / K(550) < 1$  の場合、高分子配向フィルムのフィルム面に垂直でない傾斜方向からの光に関して位相差（複屈折）と同様に波長分散が短波長ほど小さくなる。

K値の好ましい範囲としては、前記式 (d), (e) のRをKに読みかえるものとする。

本発明の位相差フィルムは、前述したようにブレンド高分子からなるものでも共重合体からなるものでもよい。

本発明の位相差フィルムを構成する高分子材料は特に限定されず、上記の条件を満たすブレンド又は共重合体であればよく、耐熱性に優れ、光学性能が良好で、溶液製膜ができる材料、特に熱可塑性ポリマーが好ましい。例えばポリアリレート、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリオレフィン、ポリエーテル、ポリスルフィン系共重合体、ポリスルホン、ポリエーテルスルホンなどから1種類又

は2種類以上を適宜選択することができる。ただし、高分子配向フィルムの吸水率が1重量%以下でないと位相差フィルムとして実用する上で問題があるので、フィルム材料はフィルムの吸水率が1重量%以下、好ましくは0.5重量%以下の条件を満たすように選択することが重要である。

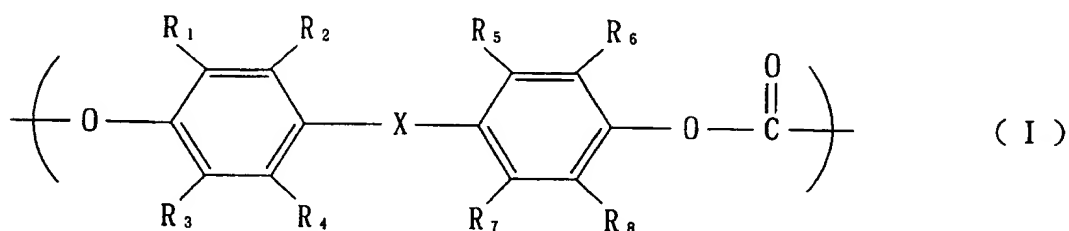
ブレンド高分子であれば、光学的に透明である必要があることから相溶ブレンドまたは、各々の高分子の屈折率が略等しいことが好ましい。ブレンド高分子の具体的な組み合わせとしては、例えば負の光学異方性を有する高分子としてポリ(メチルメタクリレート)と、正の光学異方性を有する高分子としてポリ(ビニリデンフロライド)、ポリ(エチレンオキサイド)、ポリ(ビニリデンフロライド-コートリフルオロエチレン)の組み合わせ、正の光学異方性を有する高分子としてポリ(フェニレンオキサイド)と、負の光学異方性を有する高分子としてポリスチレン、ポリ(スチレン-コーラウロイルマレイミド)、ポリ(スチレン-コーシクロヘキシルマレイミド)、ポリ(スチレン-コーフェニルマレイミド)の組み合わせ、負の光学異方性を有するポリ(スチレン-コーマレイン酸無水物)と正の光学異方性を有するポリカーボネート、また、正の光学異方性を有するポリ(アクリロニトリル-コーブタジエン)と負の光学異方性を有するポリ(アクリロニトリル-コースチレン)等を好適に挙げることができるが、これらに限定されるものではない。特に透明性の観点から、ポリスチレンと、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキサイド)等のポリ(フェニレンオキサイド)との組み合わせが好ましい。かかる組み合わせの場合、該ポリスチレンの比率が全体の67重量%以上75重量%以下を占めることが好ましい。

また、共重合体としては例えばポリ(ブタジエン-コーポリスチ

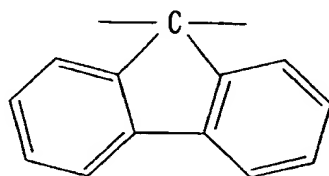
レン)、ポリ(エチレンーコーポリスチレン)、ポリ(アクリロニトリルーコーブタジエン)、ポリ(アクリロニトリルーコーブタジエンーコースチレン)、ポリカーボネート共重合体、ポリエステル共重合体、ポリエステルカーボネート共重合体、ポリアリレート共重合体等を用いることが出来る。特に、フルオレン骨格を有するセグメントは負の光学異方性となり得るため、フルオレン骨格を有するポリカーボネート共重合体、ポリエステル共重合体、ポリエステルカーボネート共重合体、ポリアリレート共重合体等はより好ましく用いられる。

ビスフェノール類とホスゲンあるいは炭酸ジフェニルなどの炭酸エステル形成性化合物と反応させて製造されるポリカーボネート共重合体は透明性、耐熱性、生産性に優れており特に好ましく用いることが出来る。ポリカーボネート共重合体としては、フルオレン骨格を有する構造を含む共重合体であることが好ましい。フルオレン骨格を有する成分は1～99モル%含まれていることが好ましい。

本発明の位相差フィルムの高分子配向フィルムの材料として好適なものは、下記式(I)

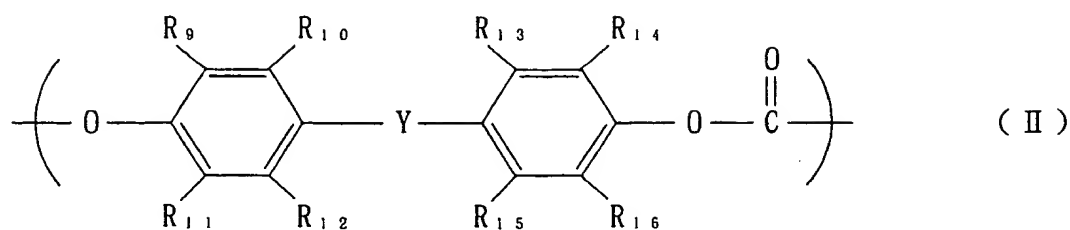


(上記式(I)において、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_8$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数1～6の炭化水素基から選ばれ、Xは

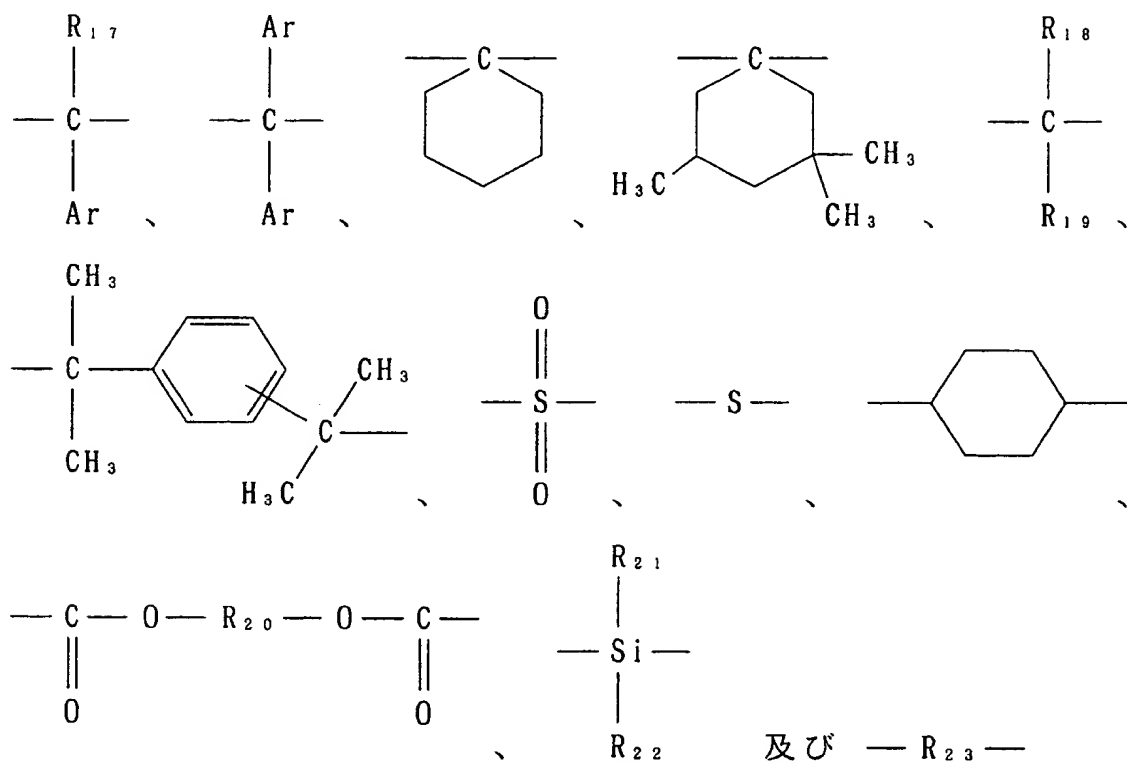


である。)

で示される繰り返し単位と、下記式 (II)



(上記式 (II) において、 $\text{R}_9 \sim \text{R}_{16}$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1 ～ 22 の炭化水素基から選ばれ、Y は



から選ばれる。Y 中の  $\text{R}_{17} \sim \text{R}_{19}$ 、 $\text{R}_{21}$  及び  $\text{R}_{22}$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1 ～ 22 の炭化水素基から選ばれ、 $\text{R}_{20}$  及び  $\text{R}_{23}$  はそれぞれ独立に炭素数 1 ～ 20 の炭化水素基から選ばれ、Ar は炭素数 6 ～ 10 のアリール基である。)

で示される繰り返し単位とから構成されるポリカーボネートの高分子配向フィルムからなり、上記式 (I) で表わされる繰り返し単位

は該ポリカーボネート全体の30～90モル％を占め、上記式（Ⅱ）で表わされる繰り返し単位は全体の70～10モル％を占める材料である。

この材料は、上記式（Ⅰ）で表わされるフルオレン骨格を有する繰り返し単位と上記式（Ⅱ）で表わされる繰り返し単位とからなるポリカーボネート共重合体、および上記式（Ⅰ）で表わされるフルオレン骨格を有する繰り返し単位からなるポリカーボネートと上記式（Ⅱ）で表わされる繰り返し単位からなるポリカーボネートとの組成物（以下ブレンドポリマーと呼ぶことがある）である。共重合体の場合、上記式（Ⅰ）および（Ⅱ）で表わされる繰り返し単位はそれぞれ2種類以上組み合わせてもよく、組成物の場合も、上記繰り返し単位はそれぞれ2種類以上組み合わせてもよい。

上記式（Ⅰ）において、 $R_1 \sim R_8$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数1～6の炭化水素基から選ばれる。かかる炭素数1～6の炭化水素基としては、メチル基、エチル基、イソプロピル基、シクロヘキシル基等のアルキル基、フェニル基等のアリール基が挙げられる。この中で、水素原子、メチル基が好ましい。

上記式（Ⅱ）において、 $R_9 \sim R_{16}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数1～22の炭化水素基から選ばれる。かかる炭素数1～22の炭化水素基としては、メチル基、エチル基、イソプロピル基、シクロヘキシル基等の炭素数1～9のアルキル基、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基等のアリール基が挙げられる。この中で、水素原子、メチル基が好ましい。

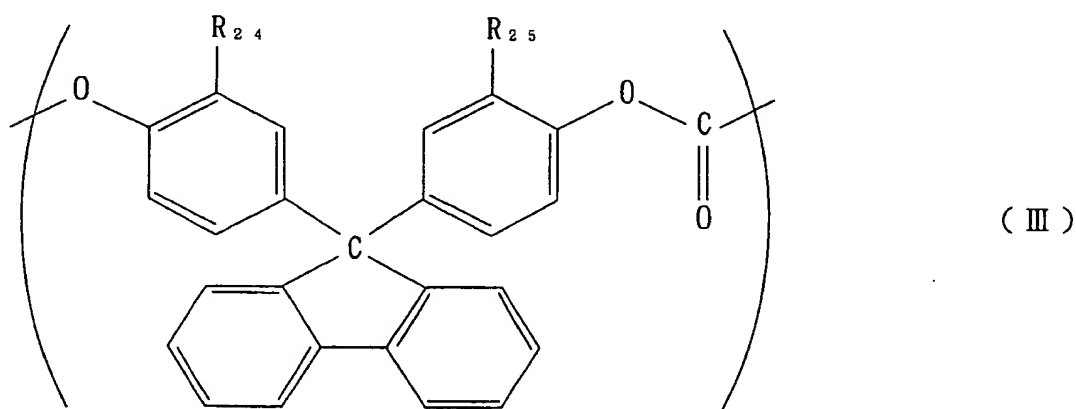
上記式（Ⅱ）のYにおいて、 $R_{17} \sim R_{19}$ 、 $R_{21}$ 及び $R_{22}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数1～22の炭化水素基から選ばれる、かかる炭化水素基については、上記したものと同じものを挙げるができる。 $R_{20}$ 及び $R_{23}$ はそれぞれ独立に炭素数1

～20の炭化水素基から選ばれ、かかる炭化水素基については、上記したものと同じものを挙げることができる。Arはフェニル基、ナフチル基等の炭素数6～10のアリール基である。

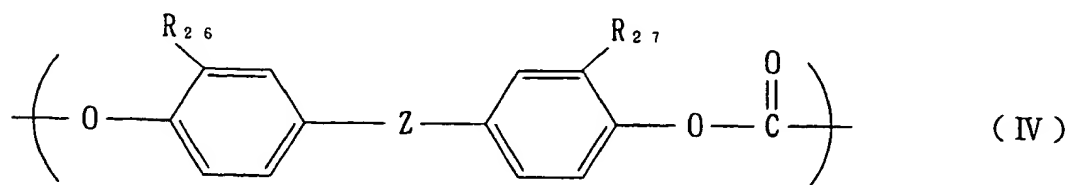
上記式（I）の含有率、すなわち共重合体の場合共重合組成、組成物の場合ブレンド組成比は、ポリカーボネート全体の30～90モル％である。かかる範囲を外れた場合には、測定波長400～700 nmにおいて位相差絶対値が短波長ほど小さくなるということがない。上記式（I）の含有率は、ポリカーボネート全体の35～85モル％が好ましく、40～80モル％がより好ましい。

ここで上記モル比は共重合体、ブレンドポリマーに関わらず、高分子配向フィルムを構成するポリカーボネートのバルク全体で、例えば核磁気共鳴（NMR）装置により求めることができる。

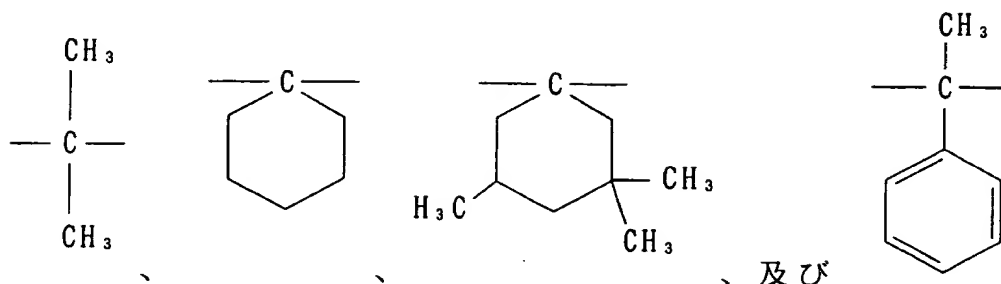
この材料におけるポリカーボネートとしては、下記式（Ⅲ）



（上記式（Ⅲ）において、 $R_{24}$ 及び $R_{25}$ はそれぞれ独立に水素原子またはメチル基から選ばれる。）で示される繰返し単位と、下記式（Ⅳ）



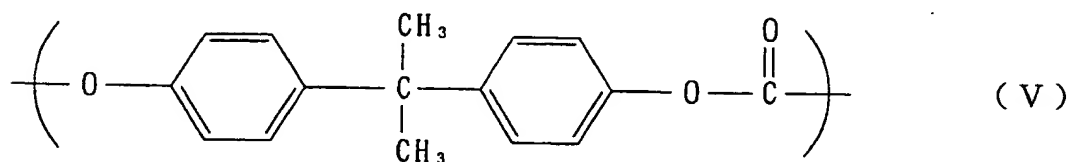
(上記式 (IV) において  $R_{26}$  及び  $R_{27}$  はそれぞれ独立に水素原子及びメチル基から選ばれ、Z は



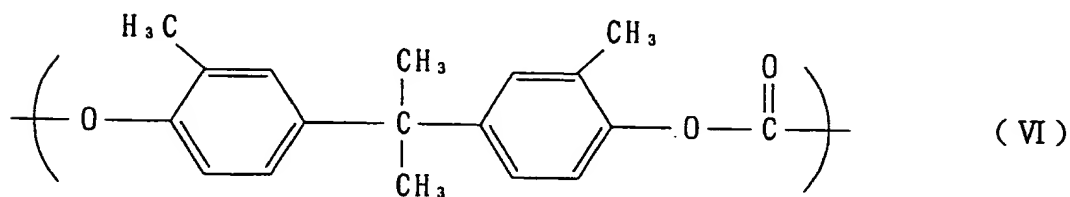
から選ばれる。) )

で示される繰り返し単位とから構成されるポリカーボネート共重合体及び／またはポリカーボネート組成物（ブレンドポリマー）が好ましい。

さらに、下記式 (V) ～ (IX) で示される繰り返し単位からなる共重合体において、繰り返し単位 (IX) の割合が40～75モル％であるもの、下記式 (VI) 及び (IX) で示される繰り返し単位からなる共重合体において (IX) の割合が30～70モル％であるもの、下記式 (VII) 及び (IX) で示される繰り返し単位からなる共重合体において、(IX) の割合が30～70モル％であるもの、下記式 (V) 及び (VIII) で示される繰り返し単位からなる共重合体において、(VIII) の割合が40～75モル％であることがそれぞれより好ましい。

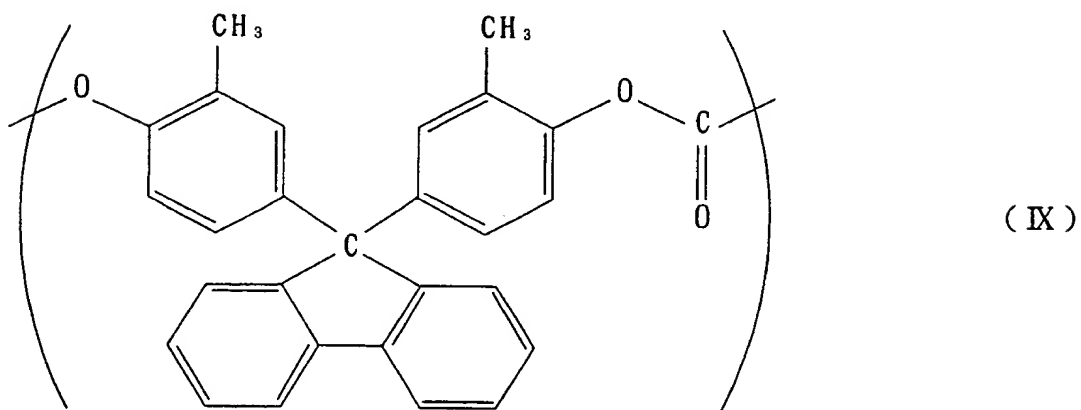
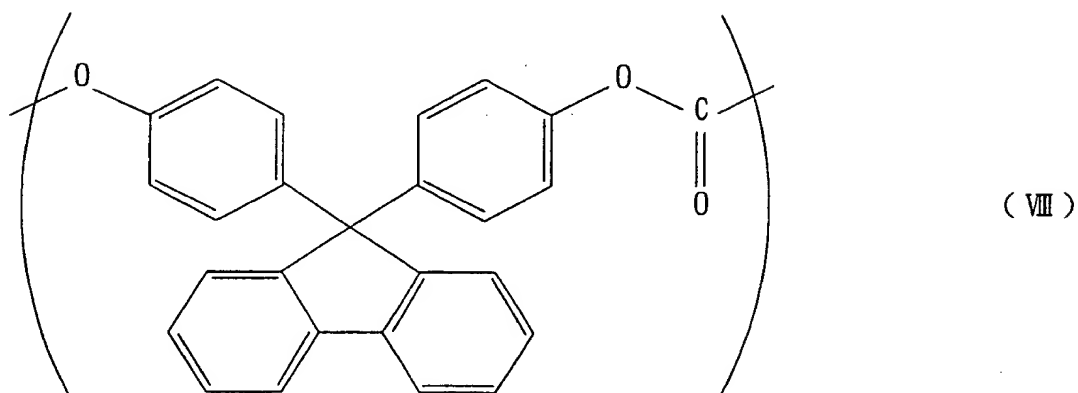
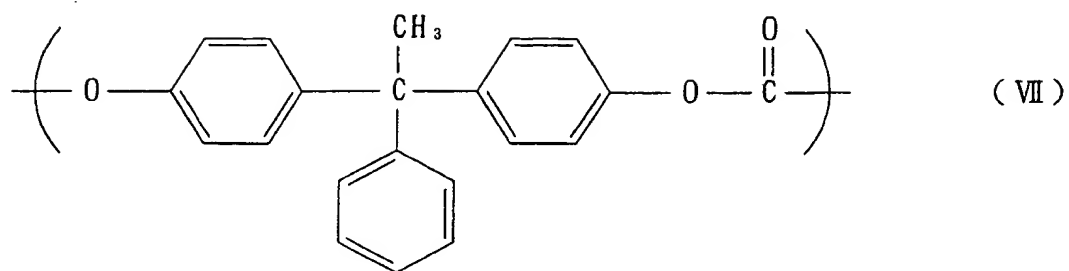


(V)



(VI)





最も好ましい材料はビスフェノール A (BPA、上記式 (V) に対応) とビスクレゾールフルオレン (BCF、上記式 (IX) に対応) を含む共重合体又は高分子ブレンドあるいはこれらの混合物であり、これらの成分の配合比は BCF の含有率が 55~75 モル %、より好ましくは

55～70モル％である。これらの材料においてより理想に近い $\lambda/4$ 板や $\lambda/2$ 板を得ることができる。

上記した共重合体及び／またはブレンドポリマーは公知の方法によって製造し得る。ポリカーボネートはジヒドロキシ化合物とホスゲンとの重縮合による方法、溶融重縮合法等が好適に用いられる。ブレンドの場合は、相溶性ブレンドが好ましいが、完全に相溶しなくても成分間の屈折率を合わせれば成分間の光散乱を抑え、透明性を向上させることが可能である。

本発明の位相差フィルムを構成する高分子配向フィルムの材料高分子の極限粘度は 0.3～2.0 dl/g であることが好ましい。これ以下では脆くなり機械的強度が保てないといった問題があり、これ以上では溶液粘度が上がりすぎるため溶液製膜においてダイラインの発生等の問題や、重合終了時の精製が困難になるといった問題がある。

本発明の位相差フィルムは透明であることが好ましく、ヘーズ値は 3 % 以下、全光線透過率は 85 % 以上であることが好ましい。また、前記高分子フィルム材料のガラス転移点温度は 100℃ 以上、より好ましくは 120℃ 以上であることが好ましい。

さらに、フェニルサリチル酸、2-ヒドロキシベンゾフェノン、トリフェニルフォスフェート等の紫外線吸収剤や、色味を変えるためのブルーイング剤、酸化防止剤等を添加してもよい。

本発明の位相差フィルムは上記ポリカーボネートなどのフィルムを延伸等により配向させたフィルムを用いるものである。かかるフィルムの製造方法としては、公知の溶融押し出し法、溶液キャスト法等が用いられるが、膜厚むら、外観等の観点から溶液キャスト法がより好ましく用いられる。溶液キャスト法における溶剤としては、メチレンクロライド、ジオキソラン等が好適に用いられる。

また、延伸方法も公知の延伸方法を使用し得るが、好ましくは縦一軸延伸である。フィルム中には延伸性を向上させる目的で、公知の可塑剤であるジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート等のフタル酸エステル、トリブチルフォスフェート等のりん酸エステル、脂肪族二塩基エステル、グリセリン誘導体、グリコール誘導体等が含有してもよい。延伸時には、先述のフィルム製膜時に用いた有機溶剤をフィルム中に残留させ延伸しても良い。この有機溶剤の量としてはポリマー固形分対比 1 ~ 20wt%であることが好ましい。

また、上記可塑剤や液晶等の添加剤は、本発明の位相差フィルムの位相差波長分散を変化させ得るが、添加量は、ポリマー固形分対比 10wt% 以下が好ましく、3 wt% 以下がより好ましい。

位相差フィルムの膜厚としては限定するわけではないが、1  $\mu$ m から 400  $\mu$ m であることが好ましい。なお、本発明では位相差フィルムと表現しているが、共通して「フィルム」といい、あるいは「シート」といわれるいずれのものも含む意味である。

本発明の位相差フィルムの位相差を短波長ほど小さくするためには、特定の化学構造を有することが必須条件であり、位相差波長分散はかなりの部分がその化学構造で決まるが、延伸条件、ブレンド状態等によっても変動することに留意されるべきである。

本発明の位相差フィルムは特に 1 枚の高分子配向フィルムをもって波長依存性が少ない良好な四分の一波長板 ( $\lambda/4$  板) あるいは二分の一波長板 ( $\lambda/2$  板) を構成することができるものであるが、この用途のためには  $R(550) \geq 50\text{nm}$  が望ましく、より望ましくは  $R(550) \geq 90\text{nm}$  であり、特に  $\lambda/4$  板として用いるためには  $100\text{nm} \leq R(550) \leq 180\text{nm}$  であること、 $\lambda/2$  板として用いるためには  $220 \leq R(550) \leq 330\text{nm}$  であることが望ましい。

こうして、本発明は好適な位相差フィルムの 1 つとして、1 枚のポリカーボネート配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm 及び 550nm における位相差が、下記式 (1)

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

〔式中、 $R(450)$  及び  $R(550)$  はそれぞれ波長 450nm 及び 550nm における高分子配向フィルムの面内位相差である。〕

を満たし、かつ  $R(550)$  が 50nm 以上である位相差フィルムを提供する。

なお、位相差が測定波長 400～700 nm において短波長ほど小さくなる位相差フィルムとして酢酸セルロースフィルムが記載されている。(特許公報第 2609139 号公報中の第 2 図)。しかし、この酢酸セルロースフィルムは位相差波長分散の制御が困難であり、例えば、位相差波長分散を制御し様々な用途によって異なる最適な位相差波長分散を有する位相差フィルム(例えば反射型液晶表示装置における  $\lambda/4$  板)を提供することが困難である。その理由は、酢酸セルロースはアセチル化度にもよるが吸水率が 4～10% 程度有する材料であり、これが原因となって加水分解、寸法変形、配向緩和等の問題が生じ、位相差及びその位相差波長分散を実用的なレベルで長期間保持することが困難であるからである。すなわち材料固有に依存する問題であって、酢酸セルロースフィルムは光学的な耐久性に問題があり不都合なのである。

酢酸セルロースフィルムは、通常、例えば偏光板や、光学補償板の支持基板などとして、 $R(550)$  が数 nm の小さいもの(アセチル化度が高く吸水率 4% 程度のもの)が使用されている。このような用途においては、位相差、特に  $R(550)$  の配向緩和が生じてても実用上問題が生じないので、このフィルムを位相差フィルムとして利用することができるのである。しかしながら、 $R(550)$  がそれより大き

くなると、酢酸セルロースフィルムでは信頼性の高い位相差フィルムを得ることはできない。また、高耐湿熱性が要求される例えば自動車の車内で使う用途では、さらなる高い信頼性が求められているのが現状である。

本発明の位相差フィルムは四分の一波長板として用いることが出来る。この場合は、 $R = \Delta n \cdot d$  が可視光において最も視感度の高い波長 550nm の四分の一波長のものを用いることが好ましい。

より一般的に述べると、本発明の位相差フィルムは、1枚で広帯域  $\lambda/4$  板として用いることができるためには、位相差波長分散が

$$0.60 < R(450) / R(550) < 0.97 \text{ かつ}$$

$$1.01 < R(650) / R(550) < 1.40$$

より好ましくは

$$0.65 < R(450) / R(550) < 0.92 \text{ かつ}$$

$$1.03 < R(650) / R(550) < 1.30$$

さらに好ましくは

$$0.70 < R(450) / R(550) < 0.87 \text{ かつ}$$

$$1.04 < R(650) / R(550) < 1.25$$

の範囲内であることが好ましい。

このような四分の一波長板は、例えば、偏光板一枚だけを使用し裏面電極を反射電極と兼ねた構成である反射型液晶表示装置に用いることにより、画質に優れた反射型表示装置を得ることが可能である。また、ゲストホスト型の液晶層の観測者に対して裏面側にこの位相差フィルムを用いることも可能である。これらの場合の位相差フィルムの役割は、直線偏光を円偏光に、円偏光を直線偏光に可視光領域において変換することであるが、本発明の位相差フィルムはこのような目的を満足させることが可能である。

こうして、本発明の好適な態様の1つとして、偏光板、 $\lambda/4$ 板

、及び透明電極を有する２枚の基板間に液晶層を含む液晶セルをこの順で具備する反射型液晶表示装置であって、かかる $\lambda/4$ 板として、１枚のポリカーボネート配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式（１）

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

〔式中、 $R(450)$  及び  $R(550)$  はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差である。〕

を満たし、かつ  $R(550)$  が 100～180 nmである位相差フィルムを用いた反射型液晶表示装置を提供する。

また、これらのフィルムを上記液晶表示装置の液晶層を挟持するガラス又は高分子フィルムからなる基板の代わりに用いて、基板兼位相差フィルムの役割を持たせても良い。

また、左右どちらか一方の円偏光のみを反射するコレステリック液晶等から構成される反射型偏光板の円偏光を直線偏光に変換する素子としても、同様に使用することが出来る。

また、本発明の位相差フィルムは、粘着層、接着層を介して偏光板と貼り合わせて円偏光板または楕円偏光板としたり、また、位相差フィルム上に何らかの材料をコーティングして湿熱耐久性を向上させたり、耐溶剤性を改良したりしても良い。

本発明の位相差フィルムは、波長が短かいほど複屈折が小さい理想的な $\lambda/4$ 板や $\lambda/2$ 板を１枚の高分子配向フィルムで得るために特に開発されたものであるが、波長が短かいほど複屈折が小さくかつ吸水率が 1 wt%以下の高分子配向フィルム一般が新規に提供されるので、本発明の位相差フィルムどうしを積層して、あるいは本発明の位相差フィルムと他の光学フィルム（位相差フィルム、偏光板、光学補償板等）とを積層することにより、例えばより広範囲の波長域で理想的な $\lambda/4$ 板や $\lambda/2$ 板を製作するなど、より幅広く

各種の用途に適合した位相差フィルムあるいは光学フィルムを得ることができるものである。

本発明の 1 つの側面として、 $R(450) / R(550) < 1$  を満たす位相差フィルムを 2 以上積層した位相差フィルムを製作することができる。

本発明によれば、さらにもう一つの側面において、 $\lambda / 4$  板と  $\lambda / 2$  板を積層して成り、両方の位相差フィルムが式 (5)(6)

$$0.6 < R(450) / R(550) < 1 \quad (5)$$

$$1 < R(650) / R(550) < 1.4 \quad (6)$$

を満たす積層位相差フィルムが提供される。

この積層位相差フィルムによれば、直線偏光を積層位相差フィルムに入射した際に測定波長の 400~700 nm、好ましくは 400~780 nm においていずれの波長でもほぼ完全な円偏光とすること、逆に完全な円偏光を積層位相差フィルムに入射した際に測定波長の 400~700 nm においていずれの波長でもほぼ完全な直線偏光を得ることができる。

これを評価するための手段として、偏光板、積層位相差フィルム、反射板の順で積層した、すなわち偏光板／積層位相差フィルム／反射板の構成において、偏光板から自然偏光の可視光線を入射した際に、着色の無い黒が得られるかどうかで判断した。この構成においては、光は偏光状態を、自然偏光→(偏光板)→直線偏光 1→(積層位相差フィルム)→円偏光→(反射板)→円偏光→(積層位相差フィルム)→直線偏光 2→(偏光板)と変えるが、直線偏光 2 は直線偏光 1 と 90 度偏光軸がずれているので、偏光板を通過することが出来ず黒色となる。この黒色の着色の程度を観察すれば、積層位相差フィルムの特性を評価することが出来る。

この評価の結果、上記式 (5)(6) を満たす位相差フィルムを積

層した積層位相差フィルムでは着色のない黒が得られた。上記式(5)(6)を満たさないものでは、積層位相差フィルムは着色のある黒となる。

積層される両方の位相差フィルムが、より好ましくは

$$0.70 < R(450) / R(550) < 0.99 \text{ かつ}$$

$$1.01 < R(650) / R(550) < 1.30$$

さらに好ましくは

$$0.75 < R(450) / R(550) < 0.96 \text{ かつ}$$

$$1.02 < R(650) / R(550) < 1.20$$

を満たすべきである。

本発明の積層位相差フィルムは、位相差波長分散値が前述した上記式(5)及び(6)を満足するような2つの位相差フィルム、すなわち1/2波長板及び1/4波長板を積層させること、好ましくはそれらの光軸のなす角が50度から70度であることにより達成される。貼り合わせ角度がこの範囲を外れた場合には良好な特性が得られない。

この積層位相差フィルムは、400～700 nmの測定波長において、 $R = \lambda / 4$  (nm)をほぼ達成可能ではある。しかしながら、この特性が例えば一枚偏光板方式の反射型液晶表示装置にとって常に最適であるとは限らず、液晶表示装置に組み込む場合には、液晶層や他の光学部材とのマッチングが重要である。

位相差フィルムとして用いる高分子材料としては、上記式(5)、(6)を満足すれば特に限定はなく、その例は先に説明したが、前記フルオレン骨格を有するポリカーボネートを用いることがより好ましい。また、本発明の積層位相差フィルムを構成する1/2波長板及び1/4波長板は同じ高分子材料を用いた方が生産性の点で好ましい。



後述する実施例にても詳細に説明するが、ここで、 $R(450)/R(550) = 0.5$ 、 $R(650)/R(550) = 1.5$  のように積層位相差フィルムの位相差波長分散値が、上記式(5)、(6)を満足しない場合にどのような結果となるか、 $2 \times 2$  光学行列を用いてシミュレーションを実施した結果を図5に示す。この計算では、偏光板／積層位相差フィルム／反射板の構成に対し、偏光板から光を偏光板法線方向から入射し、法線方向に出射する光を計算している。偏光板は、偏光度 100%、反射板は理想的な鏡面反射板とした。また、この構成における光学部材の光学軸の角度をそれぞれ表2に示す。図5から判るように特に短波長側と、長波長側で反射率が大きくなっており、理想的な黒が得られないことが判る。

表 2

偏光板偏光軸角度 (°)	0
$\lambda/2$ 板遅相軸角度 (°)	75
$\lambda/4$ 板遅相軸角度 (°)	15

本発明に用いる2つの位相差フィルムは透明であることが好ましく、ヘーズ値は3%以下、全光線透過率は85%以上であることが好ましい。かかる2つの位相差フィルムを積層することにより、ヘーズ値は3%以下、全光線透過率は85%以上である積層位相差フィルムとすることが好ましい。

各位相差フィルムの膜厚は1～400  $\mu\text{m}$ が好ましい。

K値は位相差フィルムの三次元的な屈折率異方性の指標であるが、R値、膜厚によっても変化し、さらに用途によっても最適な値は異なる。ここでは、K値の代わりに別の三次元屈折率異方性の指標である  $N_z = (n_x - n_z) / (n_x - n_y)$  で好ましい範囲を記述すると、 $\lambda/4$  板や  $\lambda/2$  板のような一軸延伸品であれば、0.3

～1.5の間であることが好ましい。特に $N_z = 0.5$ のとき、位相差フィルムに入射する角度が正面入射から変化してもほとんど位相差が変化しない。二軸延伸品であれば、 $-100 \sim 100$ であることが好ましい。この $N_z$ の三次元屈折率 $n_x$ ,  $n_y$ ,  $n_z$ は前記K値の計算で使用了なものを使うものとする。

また、本発明の積層位相差フィルムは、粘着層、接着層を介して偏光板と貼り合わせて円偏光板としたり、また、位相差フィルム上に何らかの材料をコーティングして湿熱耐久性を向上させたり、耐溶剤性を改良することができる。円偏光板とする場合には、本発明の積層位相差フィルムにおける1枚の位相差フィルムの順番が重要であり、偏光板／／1／2波長板／／1／4波長板といった構成であることが必要である。この円偏光板は、偏光板側から光を入射させた場合に、広い波長領域で入射光を円偏光化させることが出来る。

1／2波長板／／1／4波長板構成である本発明の積層位相差フィルムは、1／2波長板側から直線偏光を入射させた場合には、出射させる光は広い波長領域で円偏光であり、1／4波長板側から円偏光を入射させた場合には出射される光は広い波長領域で直線偏光となる。

また、このような位相差フィルムを液晶表示装置特に偏光板一枚型反射型液晶表示装置に用いることにより、画質に優れた表示装置を得ることが出来る。この反射型液晶表示装置とは、偏光板、位相差フィルム、透明電極付き基板、液晶層、散乱反射電極付き基板の順に構成されているもの、偏光板、散乱板、位相差フィルム、透明電極付き基板、液晶層、鏡面反射電極付き基板の順に構成されているもの、偏光板、位相差フィルム、透明電極付き基板、液晶層、透明電極付き基板、反射層の順に構成されているもの等である。さら

に、該四分の一波長板は透過型と反射型の両方を兼ね備えた液晶表示装置においても使用し得る。該液晶表示装置の構成としては例えば、偏光板、位相差フィルム、透明電極付き基板、液晶層、反射透過兼用電極付き基板、位相差フィルム、偏光板、バックライトシステム等である。さらに、例えばコレステリック液晶よりなる左右どちらかの円偏光のみ反射する反射型偏光板において、円偏光を直線偏光に変換する素子として使用すれば、広帯域で良好な直線偏光が得られる。

さらにまた、本発明の位相差フィルムは、光記録装置の光ヘッドにおいて用いられる  $1/4$  波長板としても用いることができる。特に、かかる位相差フィルムは、多波長に対して  $1/4$  波長の位相差を与えることができるので、複数のレーザー光源を使う光ヘッドにおいて、位相差の数を減らすことに寄与することができる。

本発明の位相差フィルムを用いた積層位相差フィルム、液晶表示装置などの構成例を図 7～13 に示す。

#### 実施例

##### (評価法)

本明細書中に記載の材料特性値等は以下の評価法によって得られたものである。

##### (1) R, K 値の測定

複屈折  $\Delta n$  と膜厚  $d$  の積である位相差 R 値及び三次元屈折率より求められる K 値は、分光エリプソメータである日本分光(株)製の商品名『M150』により測定されたものである。R 値は入射光線とフィルム表面が直交する状態で測定しており、 $R = \Delta n \cdot d = (n_x - n_y) \cdot d$  である。また、K 値は入射光線とフィルム表面の角度を変えることにより、各角度での位相差値を測定し、公知の屈折率楕円体の式でカーブフィッティングすることにより三次元屈折率で

ある  $n_x$ ,  $n_y$ ,  $n_z$  を求め、 $K = (n_z - (n_x + n_y) / 2) * d$  に代入することにより求めている。なお、その際、別のパラメータとして平均屈折率  $n = (n_x + n_y + n_z) / 3$  が必要になるが、これについては分光光源がついたアッペ屈折率計である（株）アタゴ社製の商品名『アッペ屈折計 2-T』を用いて、測定波長  $\lambda$  500, 550, 590, 640nm の屈折率  $n$  を測定し、この 4 点からコーシーの式 ( $n = a + b / \lambda^2 + c / \lambda^4$ ;  $a, b, c$  はフィッティングパラメータ) を用いて他の波長での屈折率を求めた。 $K, R$  値とも単位は nm である。また、 $n_x, n_y, n_z$  はここでは以下のように定義される。

$n_x$  : フィルム面内における主延伸方向の屈折率

$n_y$  : フィルム面内における主延伸方向に直交する方位の屈折率

$n_z$  : フィルム表面の法線方向の屈折率

（主延伸方向とは一軸延伸の場合には延伸方向、二軸延伸の場合にはより配向度が上がるように延伸した方向を意味しており、化学構造的には高分子主鎖の配向方向を指す。）

なお、後掲の表において各波長における  $R$  は実測値で示す。また、 $R(550) > 0$  のとき屈折率異方性は正とし、 $R(550) < 0$  のとき負とする。

## （２）全光線透過率及びヘーズの測定

日本工業規格 JIS K 7105『プラスチックの光学的特性試験方法』に準じ積分球式光線透過率測定装置により測定した。評価装置としては、日本電色工業（株）製の色差・濁度測定器（商品名『COH-300A』）を用いた。

## （３）吸水率の測定

乾燥させたフィルムの状態で膜厚を  $130 \pm 50 \mu\text{m}$  とした以外は、JIS K 7209 記載の『プラスチックの吸水率及び沸騰吸水率試験方法

』に準拠して測定した。試験片の大きさは50mm正方形で、水温25℃、24時間サンプルを浸水させた後、重量変化を測定した。単位は%である。

#### (4) 高分子共重合比の測定

日本電子社製の商品名『JNM-alpha600』のプロトン NMRにより測定した。特にビスフェノールAとビスクレゾールフルオレンの共重合体の場合には、溶媒として重ベンゼンを用い、それぞれのメチル基のプロトン強度比から算出した。

#### (5) 高分子のガラス転移点温度 (T<sub>g</sub>) の測定

TA Instruments社製の商品名『DSC2920 Modulated DSC』により測定した。フィルム成形後ではなく、樹脂重合後、フレークスまたはチップの状態で測定した。

#### (6) 高分子の極限粘度測定

ウベローデ粘度管を用い、メチレンクロライド中20℃で極限粘度を求めた。

#### (7) フィルム色調の測定

日立製作所製の分光光度計である商品名『U-3500』を用い、JIS Z-8729に記載のL\* a\* b\* 表色系のうち、2度視野、c光源でb\* 値を求めた。

#### (8) フィルム膜厚測定

アンリツ社製の電子マイクロで測定した。

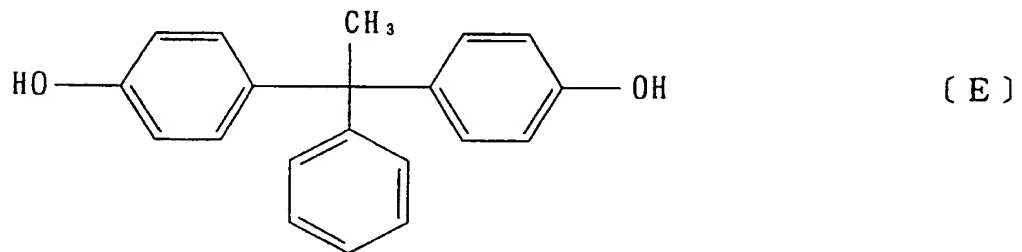
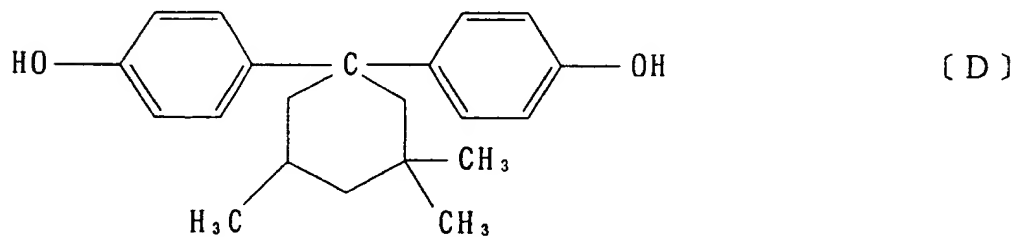
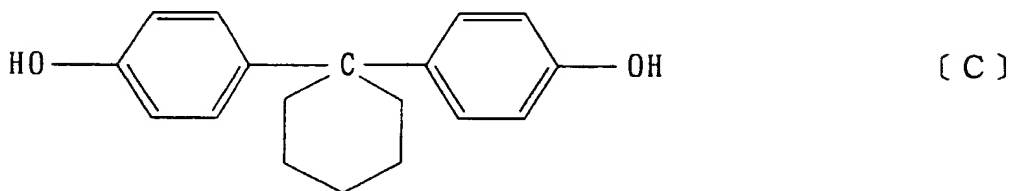
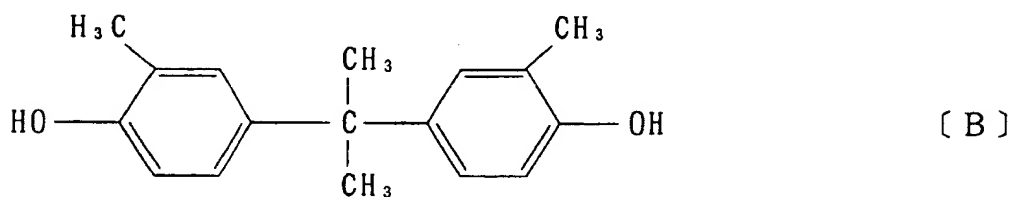
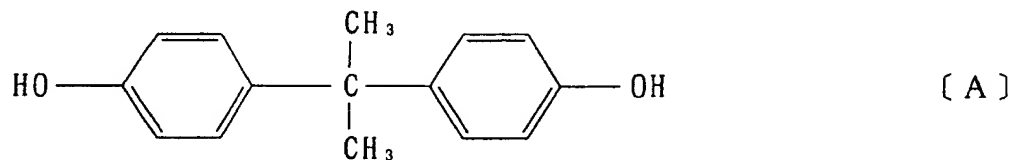
#### (9) 光弾性係数の測定

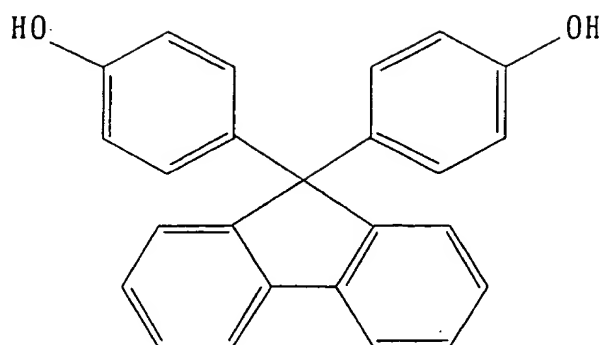
測定波長を 590nmとし、分光エリプソメータである日本分光(株)製の商品名『M150』により測定されたものである。

また、以下の実施例、比較例で用いたポリカーボネートのモノマー構造を以下に示す。

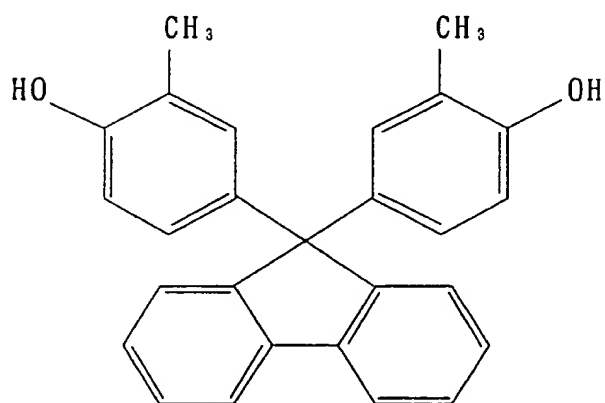
#### (10) 熱的耐久試験

フィルムを2つの恒温槽に入れ、①、②の条件で（①80℃，dry，1000時間、②60℃，60% RH，1000時間）放置後フィルムを取り出し再び上記（1）（2）（7）を行った。





〔 F 〕



〔 G 〕

なお、上記〔A〕～〔G〕のモノマーとホスゲンとの単独重合体及びポリスチレン〔PS〕、ポリフェニレンオキサイド〔PPO〕をフィルム化し延伸したものの $R(450)/R(550)$ と $T_g$ 付近で一軸延伸した際の屈折率異方性を表3に記す。なお、〔F〕、〔G〕、〔PPO〕については単独ではフィルム化が難しいので、〔F〕、〔G〕については〔A〕を少量、量を変化させて共重合させたものから外挿して求めた。また、〔PPO〕についても〔PS〕を少量、量を変化させて共重合させたものから外挿して求めた。

表 3

	[A]	[B]	[C]	[D]	[E]	[F]	[G]	[PPO]	[PS]
R(450)／ R(550)	1.08	1.07	1.08	1.08	1.07	1.14	1.14	1.15	1.06
屈折率 異方性	正	正	正	正	正	負	負	正	負

## 〔実施例 1〕

攪拌機、温度計及び還流冷却器を備えた反応槽に水酸化ナトリウム水溶液及びイオン交換水を仕込み、これに上記構造を有するモノマー〔A〕と〔G〕を表 1 のモル比で溶解させ、少量のヒドロサルファイトを加えた。次にこれに塩化メチレンを加え、20℃でホスゲンをおよそ 60 分かけて吹き込んだ。さらに、p-tert-ブチルフェノールを加えて乳化させた後、トリエチルアミンを加えて 30℃で約 3 時間攪拌して反応を終了させた。反応終了後有機相分取し、塩化メチレンを蒸発させてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。

この共重合体をメチレンクロライドに溶解させ、固形分濃度 15 重量％のドープ溶液を作製した。このドープ溶液からキャストフィルムを作製し、温度 218℃で 1.9 倍で幅自由一軸延伸し、位相差フィルムを得た。延伸前のキャストフィルムの溶媒含有量は 2 ％であり、延伸ゾーンにおけるフィルムの幅と延伸方向の長さの比は 1 : 1.2 とした。

表 4 に測定結果をまとめる。また、位相差と波長分散の関係を図 14 に記す。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、延伸方向が面内の屈折率が最も大きくなり、屈折率異方性は正であることを確認した。

また、未延伸キャストフィルムの光弾性係数は  $35 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 / \text{dy}$



neであった。

さらに熱的耐久試験を実施したがほとんど変化が無かった。

〔実施例 2〕

実施例 1 で作製した延伸前の未延伸キャストフィルムを、温度 220℃で縦横それぞれ 1.1倍ずつ逐次二軸延伸を実施した。表 4 に測定結果をまとめる。

熱的耐久試験を実施したがほとんど変化が無かった。

〔実施例 3〕

実施例 1 と表 1 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 218℃、1.7倍で幅自由一軸延伸し位相差フィルムを得た。延伸前のキャストフィルムの溶媒含有量は 0.5%であった。

表 4 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

熱的耐久試験を実施したがほとんど変化が無かった。

〔実施例 4〕

実施例 2 で作製した延伸前の未延伸フィルムを、温度 220℃で縦横それぞれ 1.1倍ずつ逐次二軸延伸を実施した。表 4 に測定結果をまとめる。

熱的耐久試験を実施したがほとんど変化が無かった。

〔実施例 5〕

実施例 1 と表 4 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 218℃、1.7倍で幅自由一軸延伸し位相差フィルムを得た。延伸前

のキャストフィルムの溶媒含有量は 0.2%であった。

表 4 に測定結果をまとめる。このフィルムの屈折率異方性は正であることを確認した。

熱的耐久試験を実施したがほとんど変化が無かった。

〔実施例 6〕

実施例 3 で作製した共重合体をメチレンクロライドに、〔A〕，〔G〕の含有比率が実施例 1 と同様になるように溶解させた。この溶液の濃度は固形分で15重量%としたが、濁りなく透明であり、またその溶液から作製したフィルムもヘーズが 0.5%と2つの共重合体は相溶系であることが分かった。さらに、そのキャストフィルムを実施例 1 と同じ条件で延伸したところ、K，R 値の波長分散関係はほぼ実施例 1 と等しくなることが分かった。

熱的耐久試験を実施したがほとんど変化が無かった。

〔実施例 7〕

表 4 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃，2 倍で一軸延伸し位相差フィルムを得た。表 4 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

表 4 実施例における位相差フィルムの光学特性

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 7
モノマー 1 構造 (仕込み量モル%)	[A] (32)	[A] (32)	[A] (40)	[A] (40)	[A] (45)	[A] (29)
モノマー 2 構造 (仕込み量モル%)	[G] (68)	[G] (68)	[G] (60)	[G] (60)	[G] (55)	[F] (71)
T <sub>g</sub> (°C)	227	227	218	218	213	234
極限粘度 [ $\eta$ ]	0.792	0.792	0.701	0.701	0.672	0.655
R (450)	113.6	2.5	149.7	3.1	102.2	91.8
R (550)	151.0	3.3	160.3	3.1	104.3	102.1
R (650)	166.1	3.6	162.7	3.0	104.3	107.4
R (450) / R (550)	0.752	0.758	0.934	1.000	0.980	0.899
R (650) / R (550)	1.100	1.091	1.015	0.968	1.000	1.052
K (450)	-54.2	-27.2	-74.7	-60.6	-50.9	-44.1
K (550)	-74.5	-46.8	-80.2	-64.2	-50.8	-52.1
K (650)	-82.3	-67.1	-81.1	-64.4	-50.7	-53.5
K (450) / K (550)	0.728	0.581	0.931	0.944	1.002	0.846
K (650) / K (550)	1.105	1.434	1.011	1.003	0.998	1.027
平均屈折率 (450)	1.635	1.635	1.627	1.627	1.628	1.633
平均屈折率 (550)	1.625	1.625	1.621	1.621	1.621	1.624
平均屈折率 (650)	1.621	1.621	1.615	1.615	1.615	1.622
吸水率 (%)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
ヘーズ (%)	0.7	0.9	0.9	0.8	0.9	0.9
全光線透過率 (%)	91.0	91.2	91.2	91.1	90.2	90.2
b *	0.7	0.7	0.7	0.6	1.0	1.0
延伸後膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	100	110	110	120	100	100

## 〔実施例 8〕

表 5 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 210℃, 1.6 倍で一軸延伸し位相差フィルムを得た。

表 5 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

## 〔実施例 9〕

表 5 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 230℃, 1.6 倍で一軸延伸し位相差フィルムを得た。

表 5 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

## 〔実施例 10〕

表 5 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 230℃, 1.7 倍で延伸し位相差フィルムを得た。

表 5 に光学特性測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

## 〔実施例 11〕

表 5 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノ

マー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃, 1.6 倍で延伸し位相差フィルムを得た。

表 5 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

表 5 実施例における位相差フィルムの光学特性

	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11
モノマー 1 構造 (仕込み量モル%)	{ B } (60)	{ C } (37)	{ D } (40)	{ E } (55)
モノマー 2 構造 (仕込み量モル%)	{ G } (40)	{ G } (63)	{ G } (60)	{ G } (45)
T <sub>g</sub> (°C)	190	232	244	225
極限粘度 [η]	0.821	0.632	0.692	0.998
R (450)	58.5	39.1	42.0	116.6
R (550)	72.8	53.9	49.9	141.8
R (650)	80.08	59.3	52.6	150.3
R (450) / R (550)	0.803	0.725	0.841	0.822
R (650) / R (550)	1.100	1.101	1.054	1.060
K (450)	-28.0	-18.9	-20.5	-58.0
K (550)	-34.2	-26.1	-25.1	-70.3
K (650)	-40.1	-28.9	-26.7	-75.2
K (450) / K (550)	0.819	0.724	0.817	0.825
K (650) / K (550)	1.173	1.107	1.064	1.070
平均屈折率 (450)	1.612	1.623	1.618	1.625
平均屈折率 (550)	1.603	1.618	1.609	1.612
平均屈折率 (650)	1.599	1.612	1.601	1.603
吸水率 (%)	0.2	0.2	0.2	0.2
ヘーズ (%)	0.8	0.9	0.9	0.8
全光線透過率 (%)	90.5	90.7	90.8	90.2
b *	0.9	0.8	0.7	0.7
延伸後膜厚 (μm)	80	90	90	100

## 〔実施例12〕

負の屈折率異方性を有する高分子としてポリスチレン（和光純薬工業（株）より入手）、正の屈折率異方性を有する高分子としてポリフェニレンオキサイド（ポリ（2, 6-ジメチル 1, 4-フェニレンオキサイド）和光純薬工業（株）より入手）を、それぞれ70, 30重量%の比率でクロロホルムに溶解させ、固形分濃度18重量%のドープ溶液を作製した。このドープ溶液からキャストフィルムを作製し、温度 130℃、3 倍に一軸延伸した。本フィルムのガラス転移点温度は 125℃であった。

表 6 に光学特性測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は負であることを確認した。

参考として、ポリスチレン、ポリフェニレンオキサイドのブレンド比率を変えた際の複屈折波長分散係数とポリフェニレンオキサイドの体積分率との関係を図15に記す。ポリフェニレンオキサイドの少ない領域では、光学異方性は負であり、複屈折波長分散係数が1より小さくなる領域が存在することが分かる。一方、ポリフェニレンオキサイドの多い屈折率異方性が正の領域ではその値は1より大きい。

次に、前述の式（c）を用いて計算した図15のような体積分率と複屈折波長分散係数との関係を図16に記す。図16はポリスチレン、ポリフェニレンオキサイドの波長 550nmにおける固有複屈折をそれぞれ、-0.10, 0.21（D. Lefebvre, B. Jasse and L. Monnerie, *Polymer* 23 706-709 (1982)を参考）として計算した。図15と図16の一致は良いといえる。ポリスチレン、ポリフェニレンオキサイドの密度はそれぞれ、1.047, 1.060 g/cm<sup>3</sup> とした。

表 6 実施例における位相差フィルムの光学特性

	実施例 12
T <sub>g</sub> (°C)	134
R (450)	-119.1
R (550)	-138.0
R (650)	-147.8
R (450) / R (550)	0.863
R (650) / R (550)	1.071
吸水率 (%)	0.3
ヘーズ (%)	0.7
全光線透過率 (%)	91.1
b *	1.0
延伸後膜厚 (μm)	140

## 〔実施例 13〕

実施例 1 で作製したフィルムを任天堂（株）社製の携帯型ゲーム機である『ゲームボーイカラー』に搭載されている一枚偏光板反射型液晶表示装置に組み込み評価した。その構成は観測者側から、偏光板／実施例 1 で作製した位相差フィルム／ガラス基板／ITO透明電極／配向膜／ツイストネマチック液晶／配向膜／金属電極兼反射膜／ガラス基板である。各層間の粘着層は省略してある。電圧オフ時に白表示となるような角度で貼り合わせて、目視にて色味の評価を実施した。この位相差フィルムはλ／4板として機能している。この市販品はビスフェノール A のホモ重合体からなるポリカーボネートフィルムで位相差の異なるものを 2 枚使用しているが、実施例 1 のフィルムを 1 枚だけ使用した場合は、特に黒表示時における着色が少なく、それによりコントラストが高く視認性に優れることが確



認できた。

〔実施例 14〕

実施例 1 で作製したフィルムをコレステリック液晶からなる反射型偏光板上に設置して、市販のバックライト／コレステリック液晶層／実施例 1 のフィルム／偏光板の構成にて色味を評価した。実施例 1 のフィルムは  $\lambda/4$  板として機能している。そのフィルムの遅相軸と偏光板の偏光軸のなす角を  $45^\circ$  とした。偏光板から出射された光は着色の少ない白状態であった。

〔実施例 15〕

市販の液晶モニター付きビデオカメラの液晶表示装置に使用されている UV 硬化型のディスコチック液晶層を用いた光学補償フィルムの支持基板から、ディスコチック液晶層剝し実施例 2 で作製した位相差フィルムと粘着層を介して貼り合わせた。これを再びこの液晶表示装置に貼り合せ、すなわち、支持基板のみ実施例 2 のものに取り替え、液晶モニターとして使用したところ、市販品の状態ではモニター水平方向から斜めに見ると白表示部分が茶色に着色して見えていたが、本構成では着色の程度は非常に少なく視認性に優れていた。また、特に正面のコントラストも落とすことが無かった。

〔比較例 1〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度  $240^\circ\text{C}$  1.5 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 2〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネ

ート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 170℃, 1.2 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 3〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃, 1.5 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 4〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 165℃, 1.2 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 5〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 230℃, 1.5 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に光学特性測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 6〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 160℃、倍率 1.1 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 7〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃、倍率 1.3 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 8〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 175℃、倍率 1.2 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例 9〕

表 7 記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 260℃、1.2 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表 7 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

## 〔比較例10〕

表7記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度 170℃、1.1 倍で延伸し位相差フィルムを得た。表7に光学特性測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

## 〔比較例11〕

表7記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度 260℃、倍率 1.5倍で延伸し位相差フィルムを得た。表7に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

## 〔比較例12〕

表7記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度 180℃、倍率 1.2倍で延伸し位相差フィルムを得た。表7に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

## 〔比較例13〕

表7記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度 160℃、1.1 倍に一軸延伸し位相差フィルムを得た。表7に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大き

くなることを確認した。

〔比較例14〕

表7記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度 175℃、1.1 倍に一軸延伸し位相差フィルムを得た。表7に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

〔比較例15〕

表7記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度 170℃、倍率 1.1倍に一軸延伸し位相差フィルムを得た。表7に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

表 7

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9	比較例 10	比較例 11	比較例 12	比較例 13	比較例 14	比較例 15
モノマー1構造 (仕込み量モル比)	[A] (19)	[A] (90)	[A] (10)	[A] (90)	[B] (19)	[B] (90)	[C] (10)	[C] (90)	[D] (10)	[D] (90)	[E] (19)	[E] (90)	[A] (100)	[C] (100)	[E] (100)
モノマー2構造 (仕込み量モル比)	[G] (81)	[G] (10)	[F] (90)	[F] (10)	[G] (81)	[G] (10)	[G] (90)	[G] (10)	[G] (90)	[G] (10)	[G] (81)	[G] (10)			
R(450)	-94.9	224.0	-96.4	370.1	-128.6	236.8	-57.8	285.4	-124.9	171.7	-164.7	127.3	319.5	74.6	75.3
R(550)	-68.4	210.3	-67.8	348.2	-87.9	223.4	-43.8	267.0	-95.0	160.3	-134.0	120.1	295.8	69.2	70.6
R(650)	-63.8	203.1	-62.6	335.3	-76.7	216.9	-37.4	254.5	-81.8	152.9	-116.0	116.3	282.8	66.4	68.2
R(450) / R(550)	1.298	1.065	1.317	1.063	1.463	1.060	1.320	1.069	1.315	1.071	1.229	1.060	1.080	1.078	1.066
R(650) / R(550)	0.873	0.966	0.855	0.963	0.872	0.971	0.854	0.953	0.861	0.954	0.866	0.968	0.956	0.959	0.965
K(450) / K(550)	1.297	1.066	1.315	1.064	1.461	1.059	1.321	1.068	1.313	1.072	1.230	1.061	1.080	1.081	1.067
K(650) / K(550)	0.870	0.963	0.852	0.962	0.873	0.972	0.855	0.952	0.860	0.962	0.866	0.962	0.951	0.958	0.966
ヘーズ (%)	1.1	0.6	1.3	0.7	1.1	0.8	1.2	0.7	1.4	0.9	1.3	0.2	1.5	0.4	0.7
全光線透過率 (%)	90.0	91.8	90.2	91.5	90.3	91.7	90.1	91.1	90.8	91.3	90.2	91.3	91.0	90.7	90.7
延伸後膜厚 (μm)	90	90	50	60	55	60	60	70	50	50	50	50	75	80	100

## 〔実施例16〕

攪拌機、温度計及び還流冷却器を備えた反応槽に水酸化ナトリウム水溶液及びイオン交換水を仕込み、これに上記構造を有するモノマーAとGを表8のモル比で溶解させ、少量のヒドロサルファイトを加えた。次にこれに塩化メチレンを加え、20℃でホスゲンを約60分かけて吹き込んだ。さらに、p-tert-ブチルフェノールを加えて乳化させた後、トリエチルアミンを加えて30℃で約3時間攪拌して反応を終了させた。反応終了後有機相分取し、塩化メチレンを蒸発させてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。

この共重合体をメチレンクロライドに溶解させ、固形分濃度20重量%のドープ溶液を作製した。このドープ溶液からキャストフィルムを作製し、一軸延伸することにより測定波長 $\lambda = 550\text{nm}$ でそれぞれ $\lambda/4$ 、 $\lambda/2$  (nm)となる位相差フィルムを作製した。

さらにこのフィルムを表8に記載の角度で貼り合わせて、偏光板//1/2波長板//1/4波長板//反射板からなる光学多層フィルムを作製した。各光学フィルム間は粘着剤を用いた。

図6に本光学多層フィルムの反射スペクトルの概要を示す。完全に着色が無く、また反射率の低い黒が実現されたものとは、図6において全波長領域において反射率が0となる場合であるが、本発明の積層位相差フィルムを用いた場合、図6から分かるように後述する比較例と比較して反射率が小さくなっておりかなり優れた黒状態のものが得られた。また、本光学多層フィルムを目視にて確認したが、着色の無い黒が得られる。

## 〔実施例17〕

実施例16と表7記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノ

マー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例16と同様に1／2波長板、1／4波長板を作製し、表1に記載の角度で貼り合わせて、偏光板／／1／2波長板／／1／4波長板／／反射板からなる光学多層フィルムを作製した。

図6に本光学多層フィルムの反射スペクトルの概要を記す。図6から分かるように比較例と比較してかなり優れた黒状態を得られることが分かった。。また、本光学多層フィルムを目視にて確認したが、着色の無い黒が得られた。

表 8

	実施例 16	実施例 17	比較例 16	比較例 17
モノマー1構造 (仕込み量モル%)	A (42)	A (34)	A (100)	—
モノマー2構造 (仕込み量モル%)	G (58)	G (66)	—	—
R(450)／R(550)	0.963	0.849	1.078	1.010
R(650)／R(550)	1.008	1.041	0.960	0.997
K(450)／K(550)	0.964	0.855	1.071	1.010
K(650)／K(550)	1.007	1.039	0.971	0.998
偏光板偏光軸角度(°)	0	0	0	0
$\lambda$ ／2板遅相軸角度(°)	75	75	75	75
$\lambda$ ／4板遅相軸角度(°)	15	15	15	15

〔比較例16〕

実施例16と表8記載のモノマーを使った以外は同様の方法にてポリカーボネート単独重合体を得た。実施例16と同様に1／2波長板、1／4波長板を作製し、表8に記載の角度で貼り合わせて、偏光板／／1／2波長板／／1／4波長板／／反射板からなる光学多層



フィルムを作製した。

図 6 に本光学多層フィルムの反射スペクトルの概要を記す。また、本光学多層フィルムを目視にて確認したが、黒に着色のあった。

〔比較例 17〕

ノルボルネン樹脂である JSR 株式会社製の商品名『ARTON G』を用いて実施例 16 と同様に 1 / 2, 1 / 4 波長板を作製し、表 8 に記載の貼り合わせ角度にて、偏光板 / 1 / 2 波長板 / 1 / 4 波長板 / 反射板からなる光学多層フィルムを作製した。

図 6 に本光学多層フィルムの反射スペクトルの概要を記す。また、本光学多層フィルムを目視にて確認したが、実施例 16, 17 に比べて黒に着色のあることが判った。

#### 産業上の利用可能性

本発明により、フィルム 1 枚だけでも、測定波長が短波長ほど複屈折が小さい位相差フィルムを得ることが可能となった。そのような複屈折波長分散性を有し、かつ、測定波長 550nm における位相差を四分の一波長にした位相差フィルムは、広い波長領域において円偏光を直線偏光に、直線偏光を円偏光に変換する位相差フィルムとして機能するので、偏光板一枚型やゲストホスト型の反射型液晶表示装置、そして片方の円偏光だけ反射するような反射型偏光素子に応用することにより、画質に優れる液晶表示装置や高性能の反射型偏光素子を生産性良く提供することが出来る。

## 請 求 の 範 囲

1. 1枚の高分子配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式(1)及び/又は(2)を満たし、かつ吸水率が1重量%以下であることを特徴とする位相差フィルム。

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

$$K(450) / K(550) < 1 \quad (2)$$

[式中、R(450)及びR(550)はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差であり、K(450)及びK(550)はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの $K = [n_z - (n_x + n_y) / 2] \times d$ (式中、 $n_x$ ,  $n_y$ ,  $n_z$ は高分子配向フィルムの三次元屈折率でそれぞれx軸、y軸、z軸方向の屈折率であり、dはフィルムの厚さである。)で計算される値である。]

2. 波長 450nm、550nm及び 650nmにおける位相差が下記式(3)及び(4)：

$$0.6 < R(450) / R(550) < 0.97 \quad (3)$$

$$1.01 < R(650) / R(550) < 1.4 \quad (4)$$

[式中、R(650)は波長 650nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差である。]

を満たす請求項1記載の位相差フィルム。

3. 波長 400~700 nmにおいて位相差が短波長ほど小さい請求項1又は2記載の位相差フィルム。

4. (1) 正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位(以下、第1のモノマー単位という。)と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位(以下、第2のモノマー単位という。)とを含む

む高分子から構成されるフィルムであって、

(2) 該第1のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  は、該第2のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも小さく、かつ

(3) 正の屈折率異方性を有する、  
高分子配向フィルムからなる請求項1記載の位相差フィルム。

5. (1) 正の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位（以下、第1のモノマー単位という。）と負の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位（以下、第2のモノマー単位という。）とを含む高分子から構成されるフィルムであって、

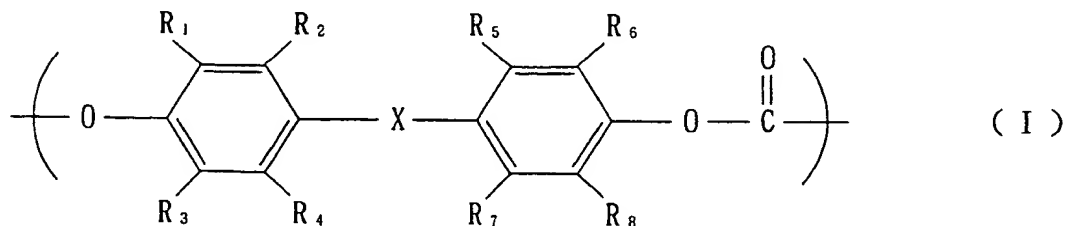
(2) 該第1のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  は、該第2のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450) / R(550)$  よりも大きく、かつ

(3) 負の屈折率異方性を有する、  
高分子配向フィルムからなる請求項1記載の位相差フィルム。

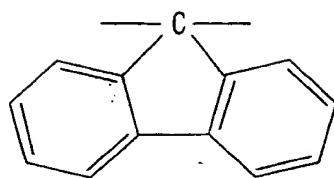
6. 前記高分子配向フィルムがガラス転移点温度が  $120^{\circ}\text{C}$  以上である高分子材料からなる請求項1記載の位相差フィルム。

7. 前記高分子配向フィルムがフルオレン骨格を有するポリカーボネートを含む請求項1記載の位相差フィルム。

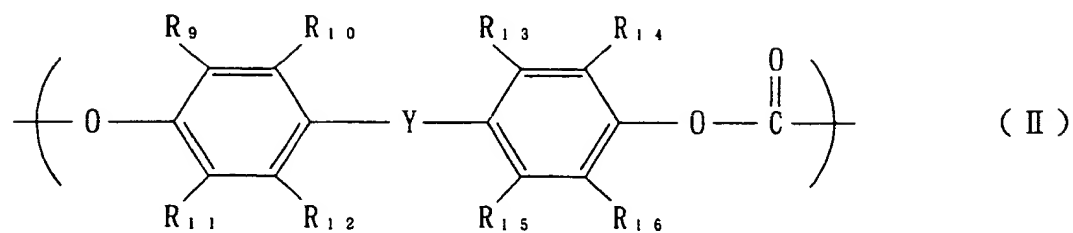
8. 下記一般式 (I)



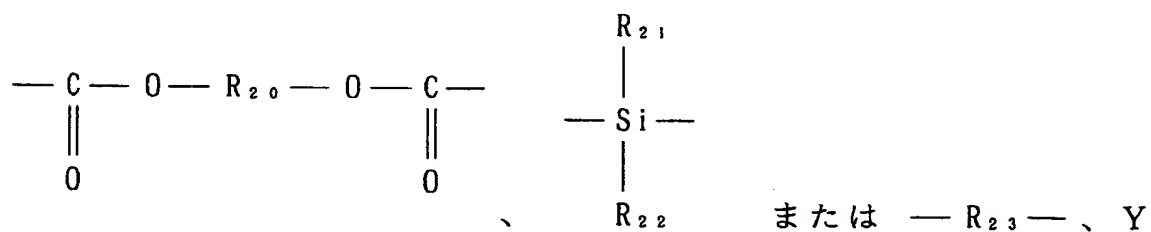
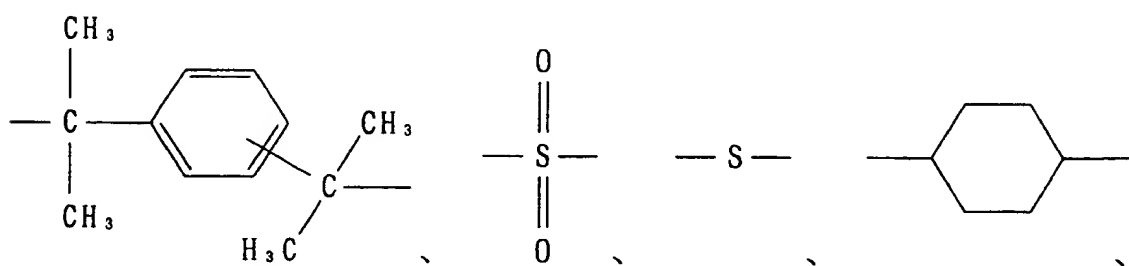
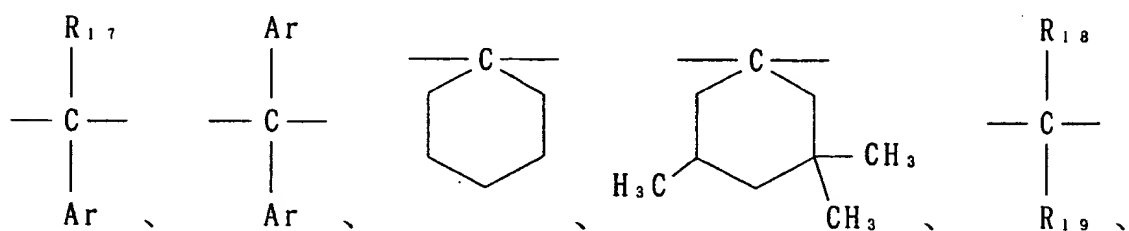
(上記式 (I) において、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_8$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数1～6の炭化水素基から選ばれ、Xは



である。) 示される繰り返し単位が全体の30～90モル%、下記式  
(II)



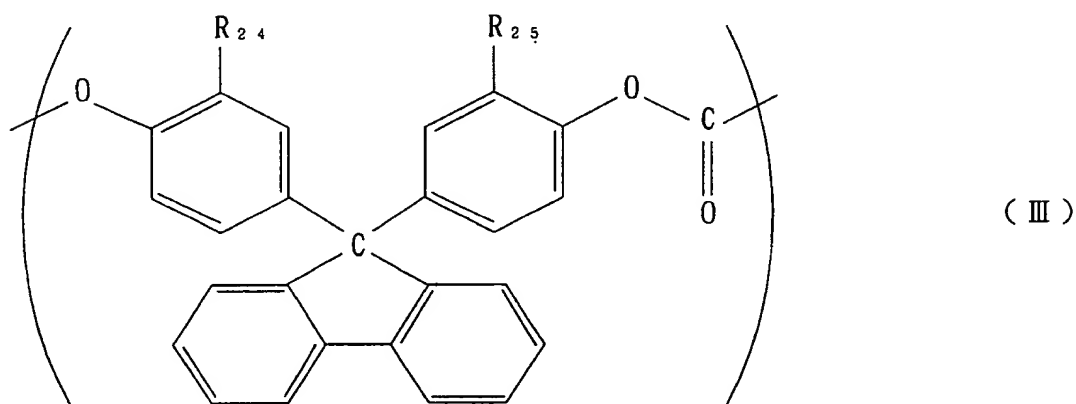
(上記式(II)において、 $R_9 \sim R_{16}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数1～22の炭化水素基から選ばれ、Yは



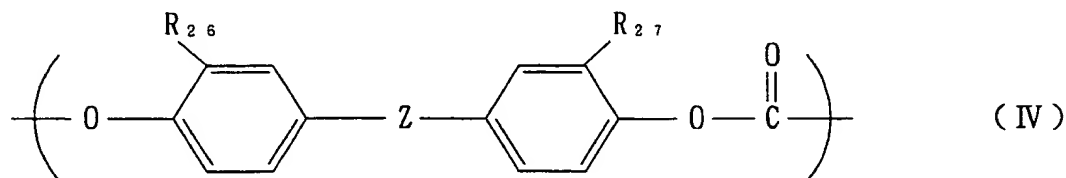
中の  $R_{17} \sim R_{19}$ ,  $R_{21}$ ,  $R_{22}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン

原子及び炭素数 1 ～ 22 の炭化水素基から、 $R_{20}$ ,  $R_{23}$  は炭素数 1 ～ 20 の炭化水素基から、また、Ar は炭素数 6 ～ 10 のアリール基から選ばれる。) で示される繰り返し単位が全体の 70 ～ 10 モル % を占めるポリカーボネート共重合体及び／またはブレンドからなる高分子配向フィルムである請求項 1 記載の位相差フィルム。

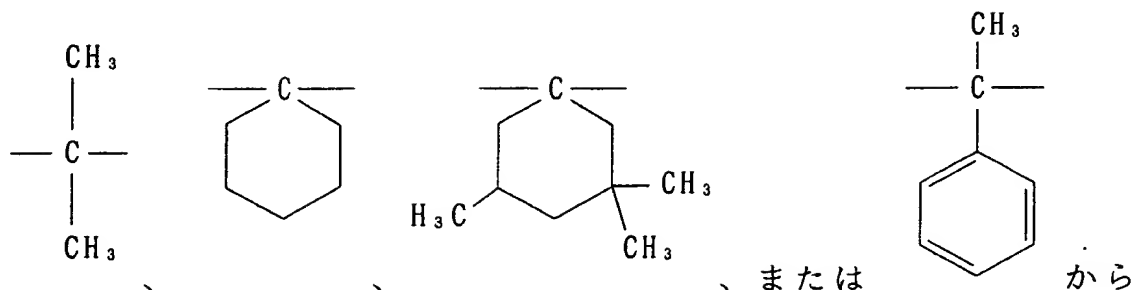
9. 下記一般式 (Ⅲ)



(上記式 (Ⅲ) において、 $R_{24}$ ,  $R_{25}$  はそれぞれ独立に水素原子またはメチル基から選ばれる。) で示される繰り返し単位が全体の 35 ～ 85 モル %、下記式 (Ⅳ) で示される繰り返し単位



(上記式 (Ⅳ) において  $R_{26}$ ,  $R_{27}$  はそれぞれ独立に水素原子、メチル基から選ばれ、Z は



選ばれる。)が全体の65～15モル%を占めるポリカーボネート共重合体及び／またはブレンドからなる高分子配向フィルムである請求項8記載の位相差フィルム。

10. 前記正の屈折率異方性を有する高分子がポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキサイド)であり、前記負の屈折率異方性を有する高分子がポリスチレンであるブレンド高分子配向フィルムであって、ポリスチレン含有割合が67重量%～75重量%である請求項5記載の位相差フィルム。

11. 物体色を表す $b^*$ 値が1.3以下である請求項1記載の位相差フィルム。

12.  $\lambda/4$ 板である請求項1記載の位相差フィルム。

13.  $\lambda/2$ 板である請求項1記載の位相差フィルム。

14.  $R(550) \geq 90\text{nm}$ である請求項12又は13記載の位相差フィルム。

15.  $\lambda/4$ 板と $\lambda/2$ 板を積層して成り、 $\lambda/4$ 板と $\lambda/2$ 板の両方が請求項1記載の位相差フィルムからなる積層位相差フィルム。

16.  $\lambda/4$ 板と $\lambda/2$ 板との光軸のなす角度が50度～70度の範囲内である請求項15記載の積層位相差フィルム。

17. 請求項1記載の位相差フィルムと偏光板を積層して成る円偏光板又は楕円偏光板。

18. 請求項1記載の位相差フィルムと反射型偏光板を積層して成る円偏光板又は楕円偏光板。

19. 請求項1記載の位相差フィルムと反射型偏光板と偏光板を積層して成る円偏光板又は楕円偏光板。

20. 前記反射型偏光板がどちらか一方に回転している円偏光のみを反射する機能を有する請求項18又は19記載の円偏光板又は楕円偏光板。

21. 前記反射型偏光板がコレステリック液晶高分子からなる請求項20記載の円偏光板又は楕円偏光板。

22. 請求項1記載の位相差フィルムを設置した液晶表示装置。

23. 反射型液晶表示装置である請求項22記載の液晶表示装置。

24. 前記位相差フィルムが視野角補償板である請求項22記載の液晶表示装置。

25. 1枚のポリカーボネート配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が、下記式(1)

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

〔式中、R(450) 及び R(550) はそれぞれ波長 450nm及び 550nmにおける高分子配向フィルムの面内位相差である。〕

を満たし、かつ R(550) が50nm以上である位相差フィルム。

26. 偏光板、 $\lambda/4$ 板、及び透明電極を有する2枚の基板間に液晶層を含む液晶セルをこの順で具備する反射型液晶表示装置であって、かかる $\lambda/4$ 板として、1枚のポリカーボネート配向フィルムからなる位相差フィルムであって、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式(1)

$$R(450) / R(550) < 1 \quad (1)$$

〔式中、R(450) 及び R(550) はそれぞれ波長 450nm及び 550nmに

おける高分子配向フィルムの面内位相差である。]  
を満たし、かつ  $R(550)$  が 100～180 nmである位相差フィルムを用いた反射型液晶表示装置。

特許庁長官 御署名 〇〇〇〇〇〇〇〇



Fig.1

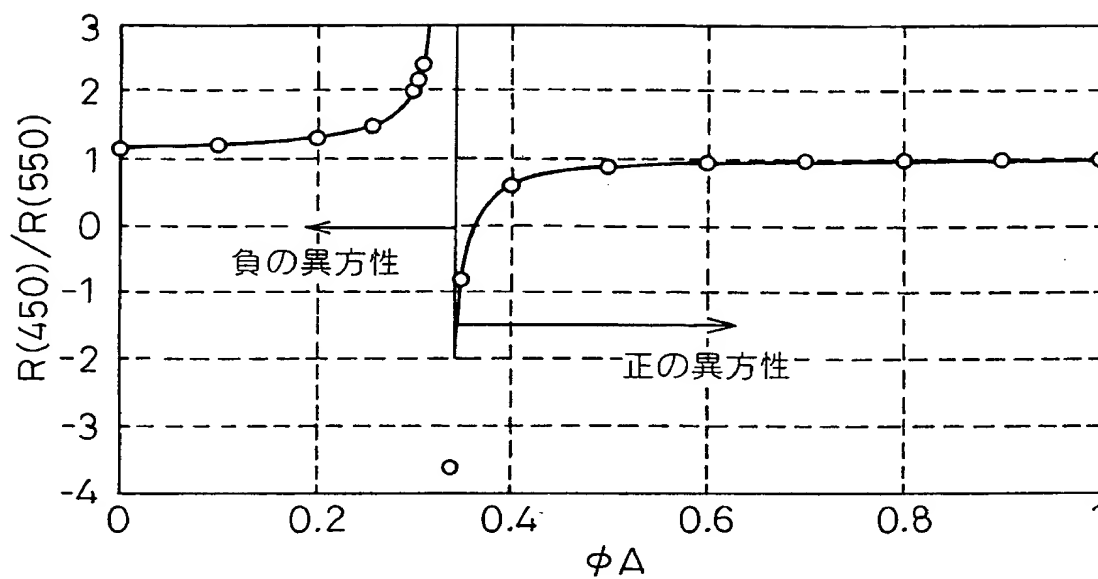
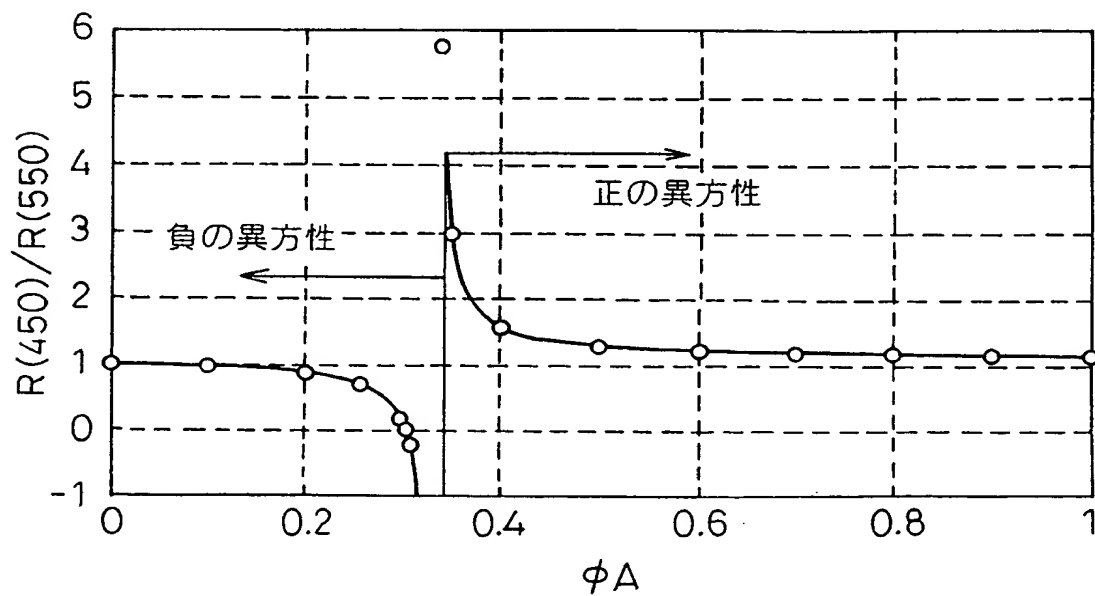


Fig.2



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Fig. 3

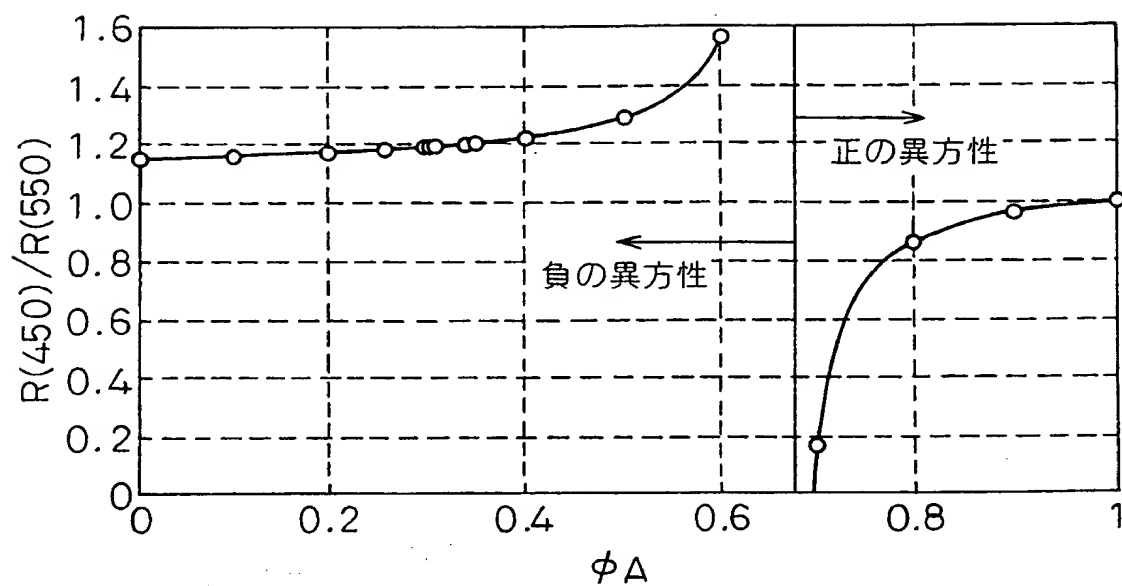
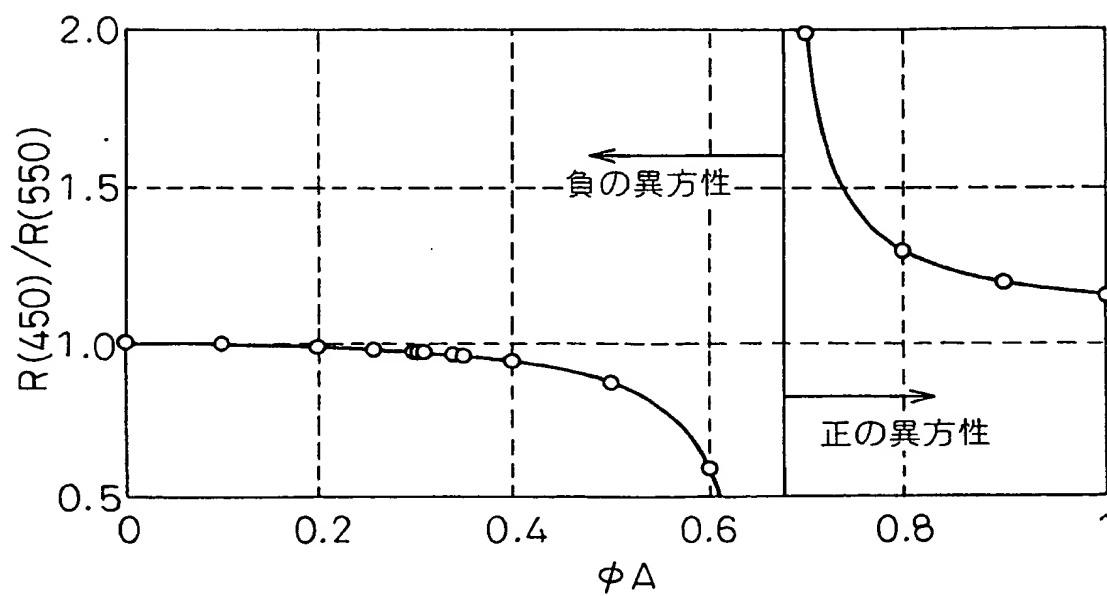


Fig. 4



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Fig. 5

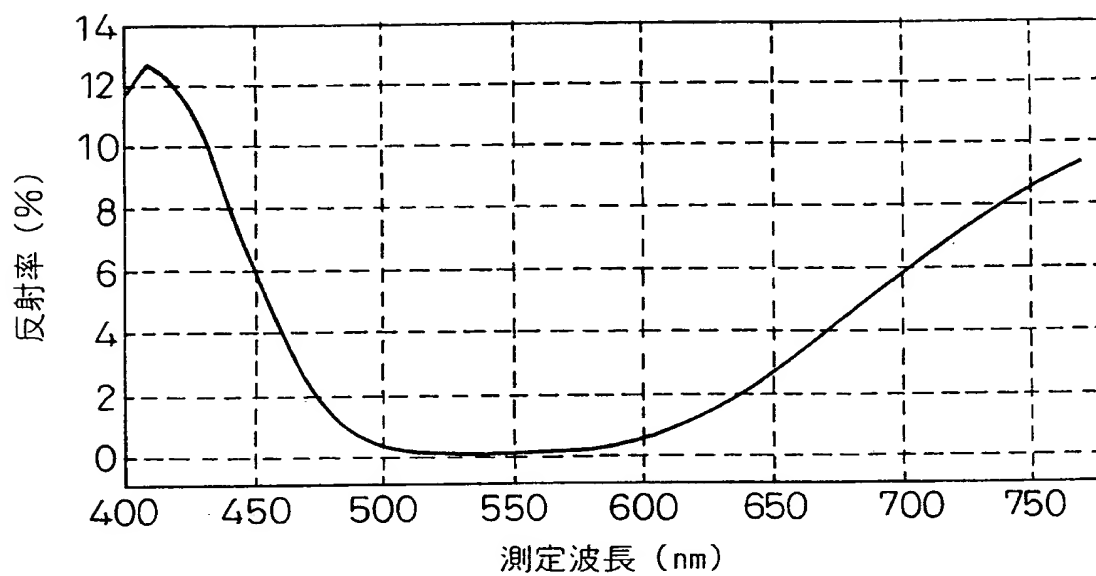
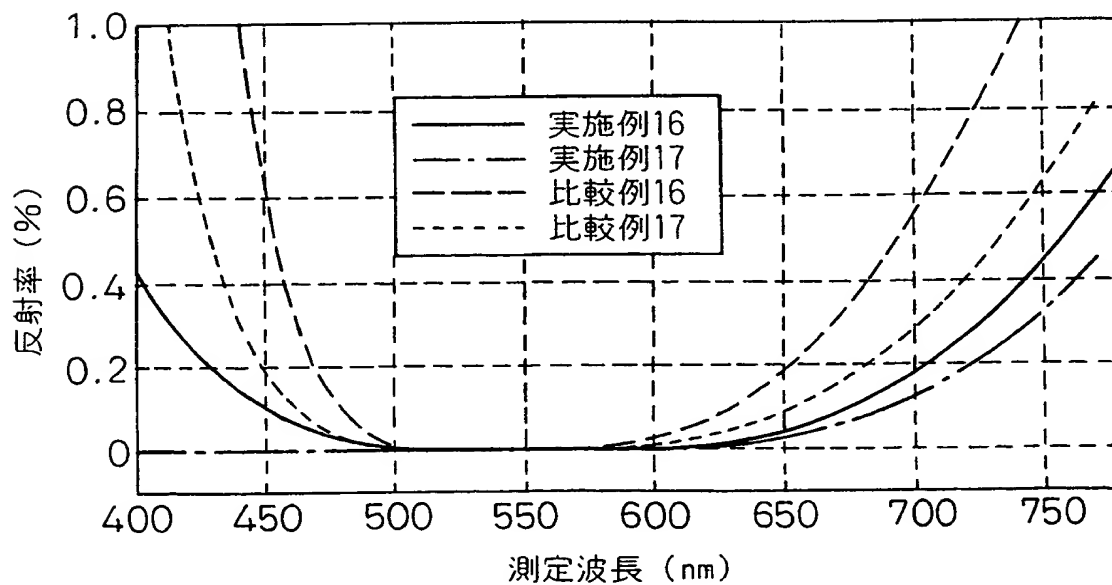


Fig. 6



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Fig. 7

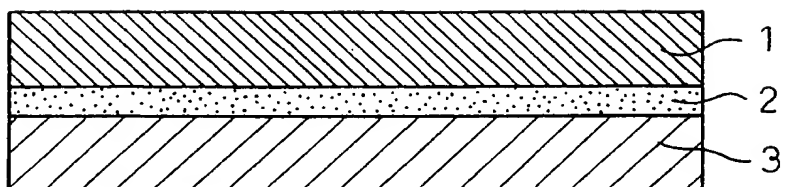


Fig. 8

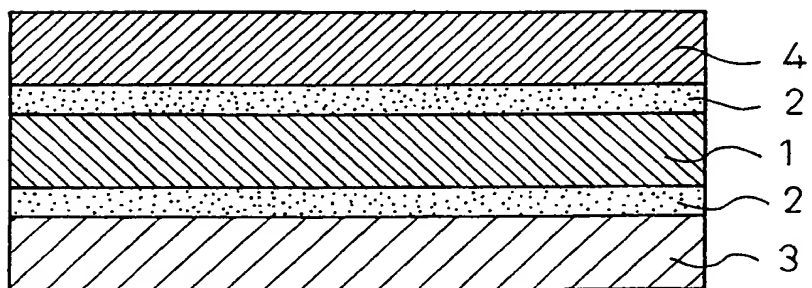
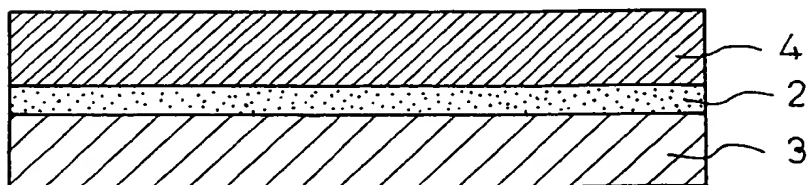


Fig. 9



THIS PAGE BLANK usoto



Fig.10

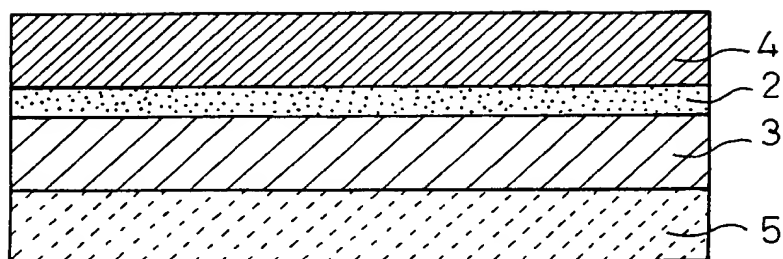
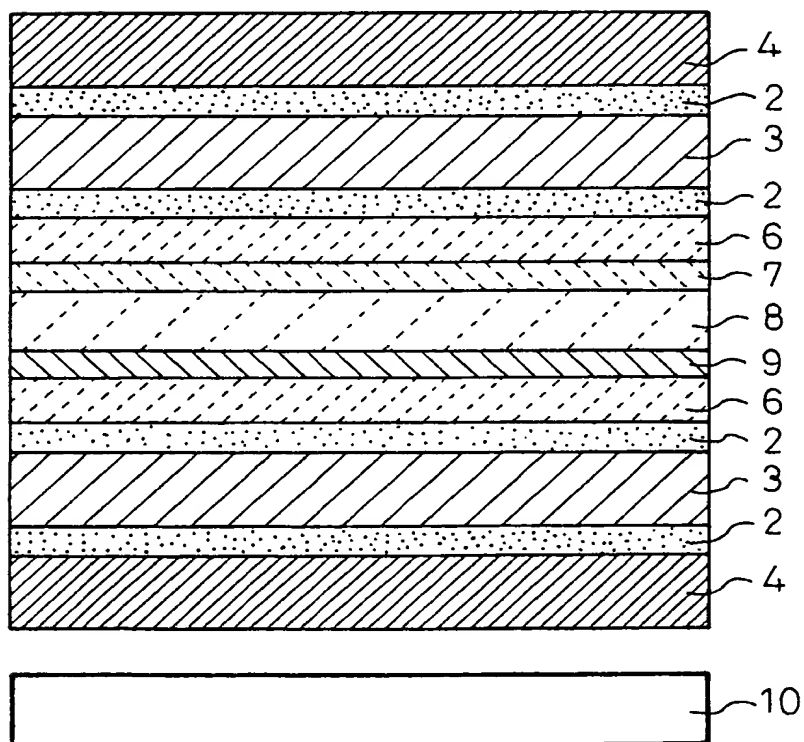


Fig.11



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Fig. 12

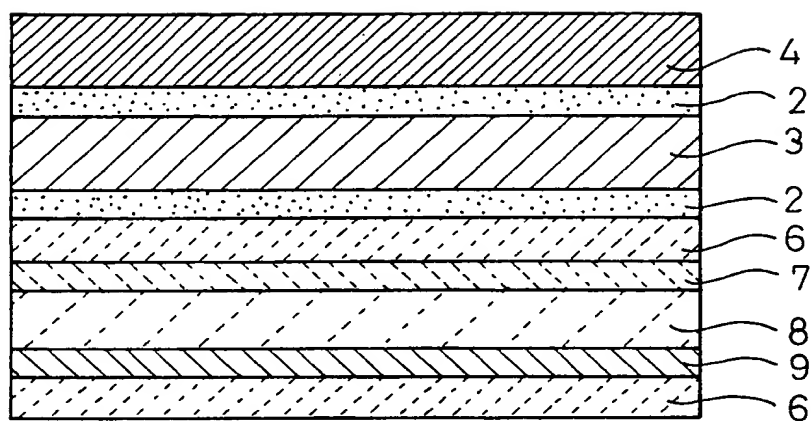
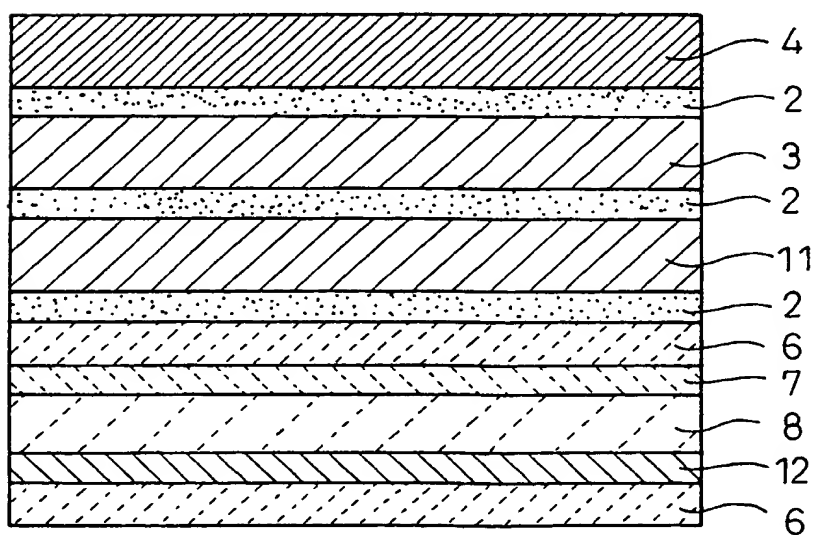
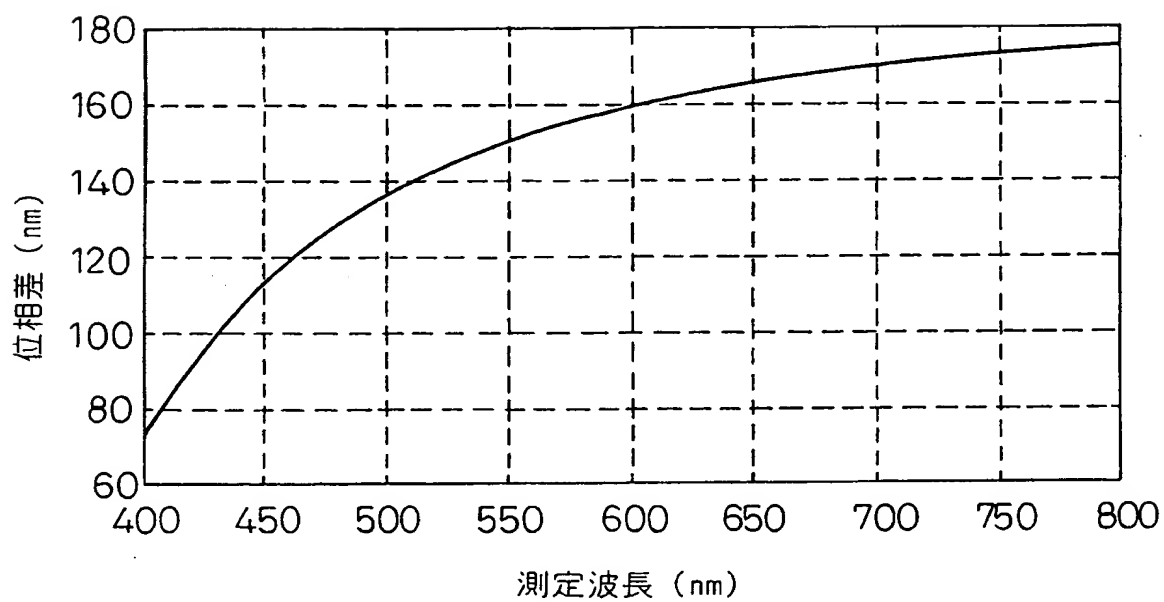


Fig. 13



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Fig.14



THIS PAGE BLANK uspto

Fig.15

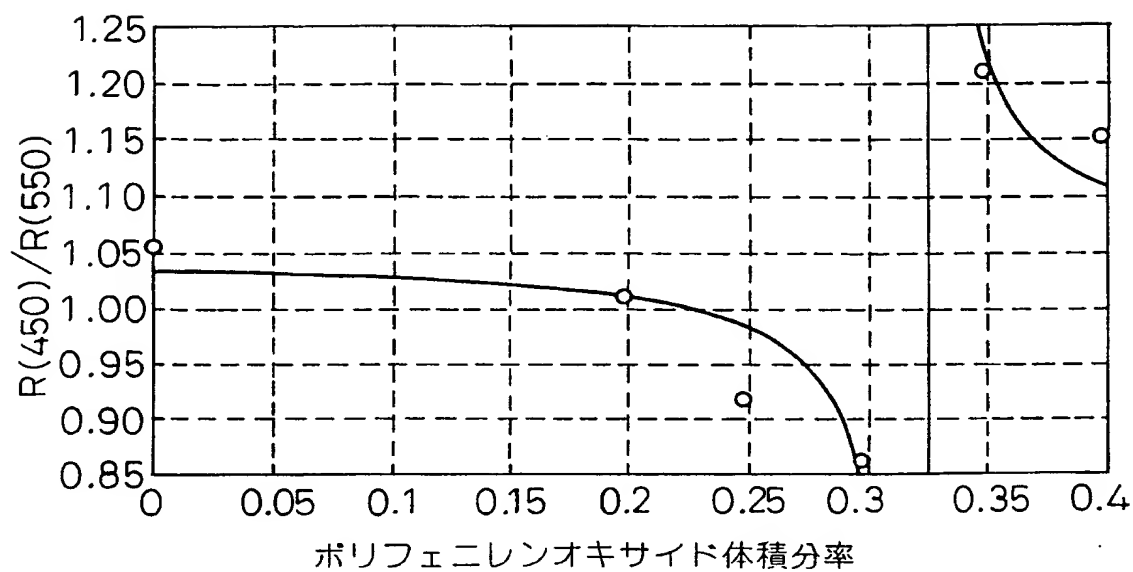
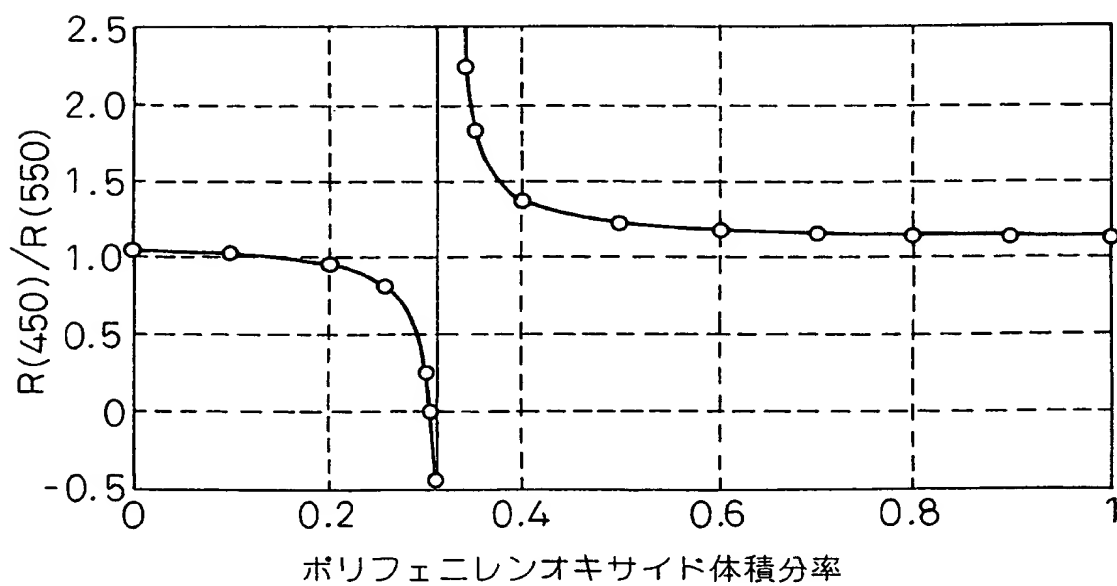


Fig.16



THIS PAGE BLANK (USPTO)



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/06057

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335, C08J5/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335, C08J5/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1999  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1999 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1999

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 8-57950, A (TOYOBO CO., LTD.), 05 March, 1996 (05.03.96), page 5, lower right column, lines 10 to 33 (Family: none)	1-3, 5, 10, 11-24, 25, 26
X	JP, 6-82624, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 25 March, 1994 (25.03.94), Claim 1; page 3, right column, line 40 to page 4, left column, line 19; page 4, right column, line 38 to page 6, right column, line 24 (Family: none)	1-9, 11-24, 25, 26
X	JP, 7-287118, A (Teijin Limited), 31 October, 1995 (31.10.95), page 3, left column, line 15 to right column, line 23 (Family: none)	1-8
X	JP, 4-116603, A (Casio Computer Co, Ltd.), 17 April, 1992 (17.04.92), page 2, lower left column, lines 4 to 9 (Family: none)	1-3, 11-24, 25, 26

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 07 January, 2000 (07.01.00)	Date of mailing of the international search report 18 January, 2000 (18.02.00)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335, C08J5/18

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335, C08J5/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-1999年  
 日本国登録実用新案公報 1994-1999年  
 日本国実用新案登録公報 1996-1999年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 8-57950, A (東洋紡績株式会社) 5. 3月. 1996 (05. 03. 96) 第5頁右下欄第10行~第33行 (ファミリーなし)	1-3, 5, 10, 11-24, 25, 26
X	JP, 6-82624, A (出光興産株式会社) 25. 3月. 1994 (25. 03. 94) 請求項1、第3頁右欄第40行~第4頁左欄第19行、第4頁右欄 第38行~第6頁右欄第24行 (ファミリーなし)	1-9, 11-24, 25, 26

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07. 01. 00

国際調査報告の発送日

18.01.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山村 浩

2V

9219

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 7-287118, A (帝人株式会社) 31. 10月. 1995 (31. 10. 95) 第3頁左欄第15行~右欄第23行 (ファミリーなし)	1-8
X	JP, 4-116603, A (カシオ計算機株式会社) 17. 4月. 1992 (17. 04. 92) 第2頁左下欄第4行~第9行 (ファミリーなし)	1-3, 11-24, 25, 26